

Die numerische Simulation von
Strömung und Stoffaustausch in
gerührten, begasten Bioreaktoren

Von der Gemeinsamen Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina
zu Braunschweig

zur Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

genemigte
Dissertation

von
Dipl.-Biotechnol. Jochen Schütze
aus Göttingen

1. Referent: Prof. Dr. W.-D. Deckwer
2. Referent: Prof. Dr. A. Schumpe
eingereicht am: 14. 6.2001
mündliche Prüfung am: 20.11.2001
(2001)

Teilergebnisse aus dieser Arbeit wurden mit Genehmigung der Gemeinsamen Naturwissenschaftlichen Fakultät, vertreten durch den Mentor, in folgenden Beiträgen vorab veröffentlicht:

Tagungsbeiträge:

Schütze, J., Gollmer, K., Deckwer, W.-D.:

Der Einsatz numerischer Strömungssimulation zur Modellierung aerober Bioprozesse

Poster Nr. A9.12 auf der 16. DECHEMA-Jahrestagung der Biotechnologen in Wiesbaden (1998).

Schütze, J., Gollmer, K., Deckwer, W.-D., Braun, M.:

Modellierung des Stoffübergangs in begasten Rührkesseln

auf der Basis numerischer Strömungssimulation

Vortrag Nr. 101 auf der GVC-Jahrestagung 1998 in Freiburg;

Gleichnamige Kurzfassung in:

Chemie Ingenieur Technik, **70**, 9, S. 1138 (1998).

Schütze, J., Gollmer, K., Deckwer, W.-D.:

Modellierung des Stoffaustausches in begasten Rührkesseln

mit numerischer Strömungssimulation

Vortrag Nr. 162 auf der GVC-Jahrestagung 2000 in Karlsruhe;

Gleichnamige Kurzfassung in:

Chemie Ingenieur Technik, **72**, 9, S. 1047 (2000).

L^AT_EX

Till Malin

Dieser Text ist beim Autor in unterschiedlichen Dateiformaten erhältlich.
(Adobe Acrobat [.pdf] / Postscript [.ps]; farbig / schwarz-weiß;
für Bildschirmdarstellung oder Ausdruck [niedrige / maximale Auflösung].)
Kontaktadressen finden sich auf der letzten Seite.

*This text is not available in English, but the author will be glad to answer any questions.
Contact addresses can be found on the very last page.*

Danksagung

Ohne die Hilfe und Unterstützung vieler Freunde und Kollegen wäre diese Arbeit nicht entstanden. Ihnen gilt an dieser Stelle mein herzlicher Dank.

Herr Prof. Dr. W.-D. Deckwer gab mir eine hochinteressante Aufgabe und alle erdenkliche Unterstützung bei meiner Arbeit daran. Für beides danke ich ihm sehr.

Herrn Prof. Dr. A. Schumpe danke ich für die Übernahme des Korreferates sowie für den Vorsitz der Promotionskommission. Herrn Prof. Dr.-Ing. D.-C. Hempel gilt mein Dank für die Mitwirkung als Prüfer in der Disputation.

Mein direkter Betreuer und Arbeitsgruppenleiter, Herr Prof. Dr.-Ing. K. Gollmer, gab mir tagtäglich wissenschaftliche, organisatorische und administrative Unterstützung; diese war für mich von größtem Wert und verdient meinen herzlichen Dank. Herr Dr. A.-P. Zeng gab mir die Möglichkeit, in Labors seiner Arbeitsgruppe den praktischen Teil meiner Arbeit auszuführen, wofür auch ihm mein Dank gilt. Weiterhin verdient hier Dr. W. Sabra dankende Erwähnung, der mir die Möglichkeit zu Vorversuchen mit dem faseroptischen Sauerstoffsensor im Rahmen seiner eigenen Fermentationen gab.

Herr T. Gäbel half mir bei Anschluß und Einrichtung des Prozeßleitrechners, und er machte mich mit dessen Benutzung und Programmierung vertraut – herzlichen Dank! Er und Frau Dr. J. Flores Candia verbreiteten als meine Kollegen in der Arbeitsgruppe „Modellierung und Automatisierung“ – natürlich zusammen mit ihrem Leiter und meinem Betreuer, Herrn Prof. Dr.-Ing. K. Gollmer – immer ein fröhliches, produktives Arbeitsklima, das ich sehr genoß. Und einen ganz besonders herzlichen Dank für allzeit fröhliche Unterstützung in beliebigen Lebenslagen verdienen Frau A. Asmus und Frau M. Ruffer!

Die Herren H. Schüler, W. Kessler und H. Zaczek versorgten mich mit wichtigem technischen Rat beim Betrieb des Pilotreaktors. Herr Dr. V. Hecht und Herr L. Bischoff stellten dankenswerterweise einen Gasflußregler zur Verfügung. All Ihnen gilt mein Dank.

Im Bereich Biotechnologie der Gesellschaft für Biotechnologische Forschung hatte ich viele weitere Kollegen, die mir mit guter Stimmung und Hilfsbereitschaft immer eine moralische Unterstützung waren. Besonders erwähnen möchte ich meinen weit gereisten Freund, Herrn Dr. H. El-Enshasy, sowie die Herren E. Grothe, Dr. H. Biebl und die „Rinasen“ (Arbeitsgruppe Dr. U. Rinas).

Weiterhin erhielt ich bei der Arbeit mit dem Computerprogramm zur numerischen Strömungssimulation FLUENT wertvollen Rat, Hilfe und Unterstützung von Herrn Dr.-Ing. M. Braun bei der Fluent Deutschland GmbH.

Neben zahllose Freunden, die aufzuzählen hier zwecklos wäre, unterstützten mich meine Eltern, und natürlich ganz besonders meine Frau Malin in unbeschreiblicher Weise. Profane Dankesworte können nicht ausdrücken, welchen Beitrag sie zu dieser Arbeit (indirekt) geleistet hat!

Braunschweig, im November 2001

Inhaltsübersicht

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	13
3	Literaturübersicht	29
4	Modelltheorie	53
5	Modellentwicklung	87
6	Experimente	119
7	Simulationsergebnisse	143
A	Zusammenfassung	181
B	Summary	183
C	Symbolverzeichnis	185
D	Herleitungen	197
E	Ergänzungen	203
	Literatur	225

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Reaktionstechnik	1
1.1.1	Mehrphasige Prozesse	1
1.1.2	Gas-Flüssigkeits-Reaktoren	2
1.1.3	Blasenbegaste Reaktoren	2
1.1.4	Rührkesselreaktoren	2
1.2	Modellierung	3
1.2.1	Optimierung	3
1.2.2	Dimensionsanalyse	4
1.2.3	Analytische Ansätze	4
1.3	Einfluß der Vermischung	5
1.3.1	Relevanzkriterien	5
1.3.2	Beurteilung der Kriterien	6
1.3.3	Modellerweiterungen	7
1.3.4	Strömungssimulation	7
1.4	Maßstabsvergrößerung	7
1.4.1	Beispiel: Emulsion	8
1.4.2	Genauere Voraussagen	9
1.5	Aufgabenstellung	10
1.5.1	Numerische Simulation	10
1.5.2	Besonderheiten	11
2	Grundlagen	13
2.1	Kennzahlen	13
2.1.1	Förderleistung	13
2.1.2	Leistungseintrag	13
2.1.3	Mischzeit und -charakteristik	14
2.1.4	Zirkulationszeit	15
2.2	Begasung	16
2.2.1	Strömung	16
2.2.2	Koaleszenz	16
2.2.3	Größenverteilung	17
2.2.4	Wirkung am Rührer	18
2.2.5	Leistungseintrag	20
2.2.6	Strömung, Vermischung	20
2.3	Stoffübertragung	21
2.3.1	Phasengrenzfläche a	22

2.3.2	Stoffübergangskoeffizient β_l	23
2.3.3	Messung und Abhängigkeiten	26
2.4	<i>Zusammenfassung</i>	28
3	Literaturübersicht	29
3.1	Experimentelle Daten	29
3.1.1	Biologische Testsysteme	29
3.1.2	Zeitliche Schwankungen	30
3.1.3	Sauerstoffaffinität	32
3.1.4	Mikroaerobe Prozesse	35
3.1.5	<i>Zusammenfassung</i>	36
3.2	Strukturierte Modelle	37
3.2.1	Vertikale Unterteilung	37
3.2.2	Rührer und Peripherie	38
3.2.3	Höher auflösende Modelle	38
3.2.4	<i>Zusammenfassung</i>	39
3.3	Strömungssimulation	40
3.3.1	Zweidimensional	40
3.3.2	Dreidimensional	41
3.3.3	Rührer-Ersatz-Modelle	42
3.3.4	Direkte Rührersimulation	43
3.3.5	<i>Zusammenfassung</i>	46
3.4	Weitergehende Simulation	46
3.4.1	Mehrphasenströmung	47
3.4.2	Verwendung der Strömungsdaten	49
3.4.3	<i>Zusammenfassung</i>	52
	Zusammenfassung — siehe Abschnitte 3.1.5 (S. 36), 3.2.4 (S. 39), 3.3.5 (S. 46) u. 3.4.3	52
4	Modelltheorie	53
4.1	Turbulenz	53
4.1.1	Das Phänomen	53
4.1.2	Modellierung	55
4.1.3	Stoffaustausch	59
4.1.4	Blasenzerteilung	62
4.1.5	Dispersion	64
4.1.6	<i>Zusammenfassung</i>	64
4.2	Numerische Strömungssimulation	65
4.2.1	Erhaltungsgleichungen	65
4.2.2	Turbulenzterme	67
4.2.3	Das k,ϵ -Turbulenzmodell	70
4.2.4	Andere Turbulenzmodelle	72
4.2.5	Numerische Behandlung	74
4.2.6	<i>Zusammenfassung</i>	79
4.3	Mehrphasenströmungen	79
4.3.1	Grundeinteilung	79
4.3.2	Kontinuumsmodelle	80
4.3.3	Die EULER/LAGRANGE-Methode	81
4.3.4	<i>Zusammenfassung</i>	85

Zusammenfassung — siehe Abschnitte 4.1.6 (S. 64), 4.2.6 (S. 79) u. 4.3.4 auf Seite	85
5 Modellentwicklung	87
5.1 Geometrie und Netz	87
5.1.1 Versuchsreaktor	87
5.1.2 Das Rechengebiet	89
5.1.3 Netz für Vorstudien	90
5.1.4 Netz der vollen Geometrie	91
5.2 Flüssigkeitsströmung	93
5.2.1 Rotierende Teile	93
5.2.2 Ausführung	95
5.2.3 Ergebnisse	95
5.2.4 Zeitmittelung	96
5.2.5 Zusammenfassung	98
5.3 Gasphasenströmung	99
5.3.1 Die Methode	99
5.3.2 Relativität	100
5.3.3 Blasengröße	104
5.3.4 Diskussion	105
5.3.5 Zusammenfassung	107
5.4 Stoffaustausch und -transport	108
5.4.1 Stoffaustausch	108
5.4.2 Gleichgewichtseinstellung	109
5.4.3 Praktische Ausführung	112
5.4.4 Rührerrotation	113
5.4.5 Freie Oberfläche	115
5.4.6 Sauerstoffverbrauch	116
5.4.7 Zusammenfassung	116
5.5 Zusammenfassung	117
5.5.1 Flüssigkeitsströmung	117
5.5.2 Gasphase	117
5.5.3 Entkopplung	117
5.5.4 Stoffaustausch	118
6 Experimente	119
6.1 Prozeßleitreechner	119
6.2 Massenstromregler	120
6.3 Gasanalysator	120
6.3.1 Meßprinzip	120
6.3.2 Meßmethode	121
6.3.3 Meßverfahren	121
6.4 Sauerstoffelektrode	121
6.4.1 Meßprinzip	123
6.4.2 Meßmethode	124
6.4.3 Meßverfahren	125
6.5 Faseroptischer Sauerstoffsensor	125
6.5.1 Meßprinzip	126
6.5.2 Meßmethode	126

6.5.3	Meßverfahren	127
6.5.4	Kalibrierung	127
6.6	<i>Zusammenfassung Meßtechnik</i>	130
6.7	Kalibrierung	130
6.7.1	CLARK-Elektrode	130
6.7.2	Gasanalysator	130
6.7.3	Faseroptischer Sauerstoffsensor	131
6.7.4	<i>Zusammenfassung Kalibrierung</i>	134
6.8	Fermentation	134
6.8.1	Organismus	134
6.8.2	Kultivierung	135
6.8.3	Experimente	136
6.8.4	Dynamische β_{la} -Messung	141
6.9	<i>Zusammenfassung</i> (siehe auch 6.6 [S. 130] und 6.7.4 [S. 134])	142
7	Simulationsergebnisse	143
7.1	Vorgehensweise	143
7.1.1	Flüssigkeitsströmung	143
7.1.2	Gasblasenströmung	144
7.1.3	Stoffaustausch	145
7.1.4	Sauerstoffverbrauch	146
7.1.5	<i>Zusammenfassung</i>	147
7.2	Ergebnisse	147
7.2.1	Modellparameter	147
7.2.2	Gasphaseneigenschaften	148
7.2.3	Konzentrationsprofile	152
7.2.4	<i>Zusammenfassung</i>	158
7.3	Modellvoraussagen	159
7.3.1	Mischzeiten	159
7.3.2	Drehzahlvariation	161
7.3.3	Maßstabsvergrößerung	166
7.3.4	Leistungseintrag	169
7.3.5	<i>Zusammenfassung</i>	169
7.4	Datenverwertung	171
7.4.1	Homogenität	172
7.4.2	Schwankungen	172
7.5	<i>Zusammenfassung</i>	174
7.6	Diskussion	175
7.6.1	Modelleigenschaften	176
7.6.2	Limitierungen	176
7.6.3	Schlußwort	178
A	Zusammenfassung	181
B	Summary	183

C	Symbolverzeichnis	185
C.1	Lateinische Buchstaben	185
C.2	Griechische Buchstaben	190
C.3	Dimensionslose Kennzahlen	192
C.4	Indizes	194
C.5	Sonstige Abkürzungen	195
D	Herleitungen	197
D.1	Rührerleistung	197
D.2	Emulsionsherstellung	197
D.3	Begasung und <i>scale-up</i>	199
D.4	Dynamische β_{la} -Messung	200
E	Ergänzungen	203
E.1	Messung des Stoffübergangs	203
E.2	Sauerstoffaffinität	205
E.3	Numerische Strömungssimulation	207
E.4	Trajektorienberechnungen	211
E.5	Numerischer Stofftransport	212
E.6	Phaseroptischer Sauerstoffsensor	213
E.7	Fed-batch-Fermentation	215
E.8	Anmerkungen zum <i>scale-up</i> aerober Bioprozesse	215
	Literatur	225

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Reaktionstechnik

Die chemische Verfahrenstechnik, erweitert durch das moderne Feld der Biotechnologie, befaßt sich mit der (bio-) chemischen Umwandlung von Stoffen. Die dafür notwendigen Reaktionen werden i.d.R. in geschlossenen Behältern ausgeführt – sog. *Reaktoren*. Dies sind Apparate, in denen verschiedene Substanzen (oder Gemische) miteinander in Kontakt gebracht werden, um chemische Reaktionen oder biochemische Umsetzungen zu ermöglichen.

1.1.1 Mehrphasige Prozesse

Nach der Beschaffenheit der Ausgangsstoffe läßt sich eine Klassifizierung der Prozesse und Apparate (Reaktoren) aufstellen: Im einfachsten Fall werden nur miteinander mischbare Flüssigkeiten vereinigt. Hier ist die Aufgabe des Reaktors, die Mischung der verschiedenen Reaktanden zu homogenisieren, um ein gleichmäßiges, vollständiges Ausreagieren des Reaktionsgemisches zu ermöglichen.¹

Weiterhin können mehrere *nicht* miteinander *mischbare* Phasen (häufig mit unterschiedlichen Aggregatzuständen) zusammengebracht werden. Für binäre Systeme kommen hier die Paarungen (1.) Gas–Feststoff, (2.) Gas–Flüssigkeit, (3.) Flüssigkeit–Flüssigkeit (Emulsion) und (4.) Flüssigkeit–Feststoff (Suspension) in Frage. In diesen Fällen soll meistens auch eine (bio-) chemische Umsetzung von Substanzen erreicht werden, die nicht miteinander mischbar sind.² Es muß also *Stoffaustausch* zwischen den Phasen erreicht werden. Dieser erfordert generell eine (idealerweise möglichst *große*) *Phasengrenzfläche*. Um diese herzustellen, müssen also die Phasen im Reaktor ineinander *dispergiert* werden.

Das Dispergieren einer fluiden Phase in einer anderen Phase ist das Zerteilen der zu dispergierenden Phase in kleine, diskrete Blasen oder Tropfen, die dann möglichst gleichmäßig in der umgebenden kontinuierlichen Phase verteilt werden. Dies ist die Aufgabe effizienter Mehrphasenreaktoren. Feste disperse Phasen müssen gewöhnlich vor der Eingabe in den Reaktor zerkleinert werden; sie werden dann im Reaktor möglichst gleichmäßig verteilt. Damit soll immer eine gleichmäßige Umsetzung innerhalb des gesamten Reaktionsvolumens und dessen effizienteste Ausnutzung erreicht werden.

¹Reaktionen mehrerer gasförmiger Komponenten miteinander sind meistens so schnell, daß gegenüber der maximalen Vermischung eher eine geordnete Reaktionsführung in Form einer geregelten Flamme im Vordergrund steht.

²Eine Alternative stellen katalytische Reaktionen an der Oberfläche eines dispersen Feststoffs dar. Auch hier ist aber die Größe der Phasengrenzfläche bestimmend für den Prozeßdurchsatz.

1.1.2 Gas-Flüssigkeits-Reaktoren

In vielen Fällen besteht ein mehrphasiges Reaktionssystem aus einem Gas und einer Flüssigkeit. Wenn die reaktive Komponente des Gases gut und schnell in der Flüssigkeit gelöst (absorbiert) werden kann, wird die Dispergierung der Phasen ineinander häufig in einem Sprühturm ausgeführt [77] – die Flüssigkeit wird hier aus Düsen in feine Tropfen versprüht, die in einen vom Gas durchströmten Raum eintreten, vom Gas umströmt werden und sich schließlich, der Schwerkraft folgend, am Reaktorboden sammeln.

Sprühtürme können also z.B. zum „Waschen“ großer Gasströme eingesetzt werden. Ein anderer Reaktortyp für diese Operation sind Tropfkörperreaktoren. Die Flüssigkeit rieselt hierin über eine Schüttung aus kleinen, festen Körpern (z.B. Steine) herab, durch deren freibleibendes Hohlraumvolumen das Gas strömt. Diese Technik wird z.B. zur Behandlung von übelriechenden oder giftigen Abluftströmen eingesetzt.

Oftmals ist aber das eigentliche Reaktionsgeschehen eindeutig in der Flüssigkeit lokalisiert, und es vollzieht sich vergleichsweise langsam, so daß der sinnvollste Reaktionsapparat zum Erreichen hoher Raumzeitausbeuten wenigstens zum größten Teil mit Flüssigkeit gefüllt ist. Wegen der schlechten Löslichkeit eines gasförmigen Reaktanden in der Flüssigkeit (z.B. Sauerstoff in wäßrigen, biotechnologischen Medien) muß aber ein kontinuierlicher Stoffübertritt aus der Gasphase in die Flüssigkeit ermöglicht werden. Dafür wird kontinuierlich (z.B. sauerstoffhaltiges) Gas in der Flüssigkeit dispergiert, so daß immer eine große (spezifische) Phasengrenzfläche für ungehinderten Gasübertritt in die Flüssigkeit zur Verfügung steht.

1.1.3 Blasenbegaste Reaktoren

Im wesentlichen werden zwei Hauptformen solcher blasenbegaster (Bio-) Reaktoren industriell eingesetzt: Turmreaktoren und Rührbehälter. In *Turmreaktoren* wird Gas von unten durch (eine oder viele) Rohröffnungen oder poröse Oberflächen eingeblasen. Es bilden sich Gasblasen, die in der Flüssigkeit aufsteigen und dadurch u.U. auch eine gewisse Zirkulationsströmung in Gang setzen. In *Rührbehältern* wird zur verbesserten Vermischung mit rotierenden Einbauten eine zusätzliche Zirkulationsströmung angetrieben. Beide Reaktortypen können zusätzlich fest stehende Einbauten (wie z.B. Wärmetauscherrohre oder einfache Strömungsbrecher) enthalten.

Turmreaktoren. Turmreaktoren haben gewisse Vorzüge: Auf Grund des Fehlens bewegter Einbauten sind sie mechanisch einfach, gut abzudichten und somit für den Betrieb unter Druck oder unter steriltechnischen Anforderungen besonders geeignet. Sie können u.a. als Blasensäulen oder Schlaufenreaktoren ausgeführt werden. Ihr Nachteil ist, daß die Flüssigkeitsströmung nur durch permanenten Gasstrom aufrecht erhalten werden kann. Soll kein (oder nur ein geringer) Stoffeintrag aus der Gasphase erreicht werden, kann mit verdünnten oder vollständig inerten Gasen begast werden. Sollen aber *kleine* Gasmengen bei hohen Partialdrücken (also unverdünnt) gleichmäßig über das Flüssigkeitsvolumen verteilt werden, ergeben sich praktische Probleme. Auch das Ausgasen flüchtiger Komponenten in die disperse Gasphase kann schwer vermieden werden, wenn der Gasstrom zum Antrieb der Flüssigkeitsumwälzung (Vermischung) nötig ist. Hier käme lediglich eine Kreislaufrückführung des Gases in Betracht.

1.1.4 Rührkesselreaktoren

Die wesentliche Alternative zum auftriebsgetriebenen Turmreaktor ist der mechanisch gerührte Behälter. Hier kann die Flüssigkeitsvermischung (angetrieben durch den Rührer) vollkommen

unabhängig von jeglicher Begasung eingestellt werden. Außerdem kann Gas über dieselben Begasungseinrichtungen wie im Turmreaktor eingeführt werden.

Insbesondere lokal (am Rührer) lassen sich in Rührkesseln sehr hohe Scherkräfte und turbulente Vermischungsintensitäten erreichen. Die Scherkräfte und hohen Turbulenzgrade führen zu einer weitergehenden Blasenzerteilung, so daß kleinere Blasen mit einer geringeren Aufstiegs geschwindigkeit und einer größeren Verweilzeit im Reaktionsvolumen resultieren. Das führt zu einer Erhöhung des dispersen Gasvolumens im Reaktionsraum.

Außerdem ergibt sich mit zerkleinerten Blasen eine größere spezifische Phasengrenzfläche und (auch wegen der höheren Turbulenzgrade in Rührernähe) ein verbesserter Stoffaustausch (vgl. Abschnitt 4.1.3, auf Seite 59). Es werden auch Rührorgane eingesetzt, die selbst als Gasverteiler wirken. In Verbindung mit einer hohlen Rührwelle läßt sich so wiederum eine Kreislaufführung des Gases (in diesem Fall innerhalb des geschlossenen Reaktionsbehälters) realisieren.

1.2 Modellierung

In der stoffverarbeitenden Industrie existiert immer die Grundanforderung, größtmögliche Stoffmengen (-ströme) bei kleinsten Apparate- und Energiekosten³ möglichst schnell und möglichst vollständig umzusetzen. Zusätzlich soll jeder Prozeß möglichst reproduzierbar und *sicher* ablaufen; menschliche Fehler bei der Prozeßführung sollen nach Möglichkeit nicht zu Katastrophen führen.

1.2.1 Optimierung

Zu diesem Zweck wird ständig an der Optimierung neuer und bestehender Prozesse gearbeitet. Die einfachste Vorgehensweise ist hierbei „Versuch und Irrtum“ – es werden gewisse Veränderungen am Apparat und/oder an der Betriebsweise vorgenommen, und in der Folge werden erreichbare Durchsätze und Ausbeuten mit früheren Erfahrungen verglichen. Definiert man für die versuchsweisen Veränderungen quantifizierbare Parameter, so läßt sich durch solche Experimente (mit entsprechender Strategie) das Optimum in einem mehrdimensionalen Raum finden, wobei jeder Parameter einer Dimension dieses Parameterraumes entspricht.

Zu einer mehr analytischen Herangehensweise gelangt man, indem ein Prozess in bestimmte Teilprozesse aufgelöst wird – diese können z.B. eine chemische Reaktion, der Wärmeaustausch oder der Stoffaustausch zwischen mehreren Phasen im Reaktor sein. Durch die gezielte Variation ausgewählter Parameter in Experimentserien erarbeitet man dann genaue Informationen über die Abhängigkeit jedes dieser Teilprozesse vom Wert jedes einzelnen Parameters. Die variierbaren Parameter lassen sich dabei in vier Gruppen einteilen: (1.) Stoffeigenschaften, (2.) Betriebsparameter, (3.) geometrische Proportionen und (4.) der absolute Maßstab (Größe) des untersuchten Apparates.

Die Abhängigkeiten bestimmter (Teil-) Prozesse von Parametern der Gruppen 1 bis 3 sind häufig unabhängig vom absoluten Maßstab (einziger Parameter der Gruppe 4), solange die geometrischen Proportionen des Apparates beibehalten werden. Hierauf basiert die sog. *Ähnlichkeitslehre* [77, 337]. Bezieht man also alle absoluten Längen auf eine charakteristische Abmessung des Apparates, so gelten für Apparate verschiedener Größe dieselben Abhängigkeiten. Drückt man die experimentell gefundenen Abhängigkeiten in einer *dimensionslosen* Form aus, so gelten mithin für geometrisch „ähnliche“ Apparate unterschiedlichster Größe exakt dieselben Korrelationen.

³Auch Personal- und andere Kosten können zusätzlich eine bedeutende Rolle spielen.

1.2.2 Dimensionsanalyse

Sinnvolle dimensionslose Darstellungen der Zusammenhänge findet man mit der *Dimensionsanalyse* [337]: Zu einer fraglichen Größe werden *alle* in Frage kommenden Einflußgrößen gesucht, von denen die fragliche Größe beeinflußt wird, also abhängig ist. Von der Anzahl aller gefundenen Größen zieht man die Anzahl aller in den Einheiten dieser Einflußgrößen (und der fraglichen Abhängigen) enthaltenen *Basiseinheiten* (Meter, Kilogramm, Sekunde, Kelvin, ...) ab. Die verbleibende Differenz ist die Anzahl der dimensionslosen Gruppen G , in die die gesammelten Größen (einschließlich der Abhängigen) durch Multiplikation und Division zusammengestellt werden können.

Mit den aufgestellten dimensionslosen Gruppen G läßt sich dann eine Korrelation der folgenden Form aufstellen:

$$G_i = B_{G_i} \cdot \prod_{j \neq i} G_j^{f_j} \quad (1.2 - 1)$$

Sie enthält so viele Unbekannte wie Gruppen, nämlich eine Proportionalitätskonstante B_{G_i} und die Exponenten f_j . Deren Werte lassen sich durch eine begrenzte Anzahl systematischer Experimente bestimmen. Mit der gefundenen Korrelation lassen sich dann geometrisch ähnliche Apparate idealerweise vollständig beschreiben.

In der Praxis ist die Verwendbarkeit solcher Korrelationen nicht unbegrenzt: Bei der Bestimmung der Parameter werden Einflüsse eines Parameters auf die Auswirkungen eines anderen Parameters vernachlässigt.⁴ Weiterhin sind die Zahlenwerte B_{G_i} und f_j nicht unbedingt Konstanten – sie können von den Werten aller physikalischen Einflußgrößen abhängen. Dies zeigt sich besonders häufig darin, daß Korrelationen nur innerhalb bestimmter Grenzen für die Werte der einzelnen dimensionslosen Gruppen Gültigkeit haben. Die Anwendung einer Korrelation in Wertebereichen für die einzelnen Gruppen (bzw. eigentlich sogar alle einzelnen Größen), in denen keine bestärkenden Meßwerte vorliegen, ist immer eine Extrapolation mit dem Risiko, den Gültigkeitsbereich der Korrelation zu verlassen.

Außerdem ist für einige Zusammenhänge die Unabhängigkeit vom Maßstab des Apparates nicht gegeben. Dies betrifft insbesondere turbulenzbeeinflusste Vorgänge in komplizierten Geometrien – wie z.B. turbulent gerührte Prozesse.

1.2.3 Analytische Ansätze

Tiefere Einblicke und bessere Vorhersagen lassen sich erreichen, wenn die relevanten (Teil-) Prozesse mit physikochemischen Gesetzen *analytisch* beschrieben werden. (Dazu geht man normalerweise von der Bilanz einer Erhaltungsgröße und all ihrer zu- und abfließenden Ströme in einem bestimmten Bilanzraum aus.) Diese *Modellbildung* ergibt Differentialgleichungen und -systeme, die sich nicht immer analytisch auflösen lassen. Insbesondere wo die Apparategeometrie eingeht und nicht einfach ist, lassen sich deswegen keine expliziten Vorhersagen für z.B. Wärme- und Stoffaustauschströme (oder viele andere quantifizierbare Phänomene) treffen.

Häufig lassen sich aus den aufgestellten Differentialgleichungen dennoch Abhängigkeiten oder wenigstens Trends erkennen. Die analytische Modellbildung vermittelt hier zumindest ein tieferes Verständnis für die behandelten Vorgänge und gibt Anhaltspunkt für eine effiziente Vorgehensweise bei den oben genannten mehr empirischen Optimierungstechniken.

In anderen Fällen sind aber die Zusammenhänge auch in der analytischen (mathematischen) Darstellung so kompliziert, daß ihre weitere Auswertung und Verwertung unmöglich wird. In solch einer Situation helfen computertechnische Methoden weiter. Mit der *numerischen* Behandlung der

⁴Es werden, mathematisch ausgedrückt, nur *partielle Ableitungen* betrachtet.

komplizierten Differentialgleichungen und -systeme lassen sich, immer für einen genau vorgegebenen Satz von Einflußgrößen, die davon abhängigen Prozeßgrößen (wie z.B. Stoff- und Wärmeströme) ermitteln. Dies versteht man gewöhnlich unter dem Begriff der „(numerischen) *Simulation*“.

1.3 Einfluß der Vermischung

Bei der Simulation von Vorgängen in (Bio-) Reaktoren interessieren vor allem Vorgänge wie Stoffaustausch, Wärmeaustausch und chemische Reaktionen, biochemische Umsetzungen oder biologische Stoffwechselleistungen. Ein Reaktor hat eine gewisse Volumenausdehnung, und nicht an jedem Punkt herrschen genau dieselben Verhältnisse – in der Nähe eines eingebauten Wärmetauscherrohres können z.B. andere Temperaturen herrschen als weit von ihm entfernt.

Für die meisten mathematischen Modelle von Prozessen in (Bio-) Reaktoren werden vereinfachende Annahmen bezüglich der Vermischung des Reaktorinhaltes gemacht: In (einstufigen) Rührkesseln wird die Flüssigkeit meistens als vollkommen homogen durchmischt angenommen (sog. Modelle mit konzentrierten Parametern). Für eine eventuelle (disperse) Gasphase kann u.U. auch eine Kolbenströmung (ohne jede Rückvermischung) angenommen werden [263]. In Blasensäulen, insbesondere im homogenen Strömungsregime, bietet sich auch für die Flüssigkeit die Annahme einer Kolbenströmung an.

Die Realität zeigt generell mehr oder weniger große Abweichungen von diesen idealisierenden Annahmen. Inhomogenitäten führen zu „verschmierten“ Betriebszuständen des Gesamtreaktors, deren Verhalten u.U. mehr oder weniger stark von der analytischen Beschreibung abweicht. Der Vermischungszustand im Reaktor kommt als ein zusätzlicher, schwer quantifizierbarer Einflußfaktor zur oben aufgestellten Liste hinzu (vgl. den zweiten Absatz in Abschnitt 1.2.1, auf Seite 3).

1.3.1 Relevanzkriterien

Es hängt von den genauen Eigenschaften eines jeden Prozesses und Apparates ab, ob die vorgenannten Inhomogenitäten im Reaktionsvolumen relevant sind, oder ob sie beim Aufstellen verlässlicher Prozessmodelle vernachlässigt werden können. Diese Entscheidung läßt sich fällen, indem charakteristische Zeitkonstanten einerseits der Vermischung im Reaktor und andererseits der beabsichtigten Austausch- und Reaktionsvorgänge miteinander verglichen werden [13].⁵

Zur Darstellung der Vermischungsvorgänge in charakteristischen Zeitkonstanten bieten sich Zirkulationszeiten, Mischzeiten und (für kontinuierlich geführte Reaktanden, z.B. die Gasphase) mittlere Verweilzeiten an. Diese Größen lassen sich mit Spurstoffexperimenten ermitteln: Der betrachteten Phase wird stoßartig eine bestimmte Menge eines Spurstoffes zugesetzt („DIRAC-Impuls“), und an anderer Stelle im Reaktor wird kontinuierlich die Konzentration des Spurstoffes über der Zeit aufgezeichnet.⁶ Bei kontinuierlich geführten Phasen (z.B. die Gasphase) kann auch eine abrupte Änderung der Zusammensetzung in der Zufuhr angewendet werden – mit speziellen Detektoren (z.B. Gasanalysatoren) wird dann die sog. *Sprungantwort* am Ausgang des rückvermischenden Systems ermittelt.

⁵Der Vergleich charakteristischer Längen-, Geschwindigkeits- oder Zeitmaße wird bei der Aufstellung von mathematischen Modellen häufig eingesetzt, um den relevanten, geschwindigkeitsbestimmenden Schritt in einer Folge von Austausch-, Transport- und Reaktionsvorgängen zu identifizieren.

⁶Der Spurstoff kann z.B. eine chemische Substanz sein, deren Konzentration mit speziellen Sonden oder durch die Messung von Lichtabsorption, Leitfähigkeit oder pH-Wert ermittelt werden kann. Letztere Größe hat die besondere Eigenschaft, daß sie (in ungesättigten Systemen) ein *logarithmisches* Maß für die Konzentration ist.

Anders werden charakteristische Zeitkonstanten für chemische Reaktionen, Transport- und Austauschvorgänge festgelegt. Für biochemische Komponenten, vor allem regulatorische Moleküle in lebenden Zellen (mRNA, Enzyme), läßt sich u.U. eine *mittlere Lebensdauer* angeben. Für Stoffwechselintermediate hingegen kann häufig eine Stoffumsatz- oder -verbrauchsrate angegeben werden. Bezieht man diese auf die physiologisch normale Konzentration der jeweiligen Substanz, so ergibt sich wiederum eine (reziproke) charakteristische Zeitkonstante.

Ähnlich kann auch mit extrazellulären Komponenten und Reaktanden in nichtbiologischen Systemen verfahren werden: Eine Bildungs- oder Verbrauchsrate wird auf eine charakteristische Konzentration (bei Sauerstoff z.B. die Löslichkeit) bezogen. Und ebenso geht man auch zur Charakterisierung von Transport- und Austauschvorgängen vor: Hier werden spezifische Stoff(austausch)ströme ebenfalls auf eine charakteristische Konzentration (Mittel- oder Maximalwert) bezogen.

1.3.2 Beurteilung der Kriterien

Je langsamer die Vermischung im Reaktor ist, desto größer sind die charakterisierenden Zeitkonstanten (Zirkulations- und Vermischungszeit). Zeigt sich im Vergleich dieser Werte mit den anderen Zeitkonstanten (für Reaktionen und Austauschvorgänge), daß die Vermischungs- oder Zirkulationszeiten größer sind, so muß mit ausgeprägten Inhomogenitäten innerhalb des Reaktionsvolumens gerechnet werden. Je nach der Empfindlichkeit des Prozesses kann es dann zu relevanten Abweichungen von einem analytisch korrekten Prozessmodell kommen, das für ideal durchmischte Systeme aufgestellt worden ist.

Ein einfaches Beispiel ist die Sauerstoffversorgung einer aeroben Bakterienkultur: Suspendierte Bakterien nehmen gelösten Sauerstoff aus der Flüssigkeit auf. Es wird (vereinfachend) angenommen, daß Sauerstoffeintrag aus den Blasen in die Flüssigkeit nur in unmittelbarer Nähe des (Turbulenz erzeugenden) Rührorgans stattfindet.⁷ Bezieht man die (volumenbezogene) Verbrauchsrate für den Sauerstoff auf dessen Löslichkeit, erhält man die Zeit, in der ohne Sauerstoffzufuhr die Konzentration von Sättigung auf Null absinkt. Ist die mittlere Zirkulationszeit, die vergeht, bis ein Fluidelement nach Verlassen der Rührernähe wieder dorthin gelangt, größer, so ist mit lokalem Sauerstoffmangel im Reaktor zu rechnen. Ist nun die Zeit, die ein Bakterium diesem Sauerstoffmangel ausgesetzt ist, länger als die Zeit, in der sein Stoffwechsel auf diesen Umstand merklich reagiert, so wird der lokale Mangel Auswirkungen auf die biochemischen Vorgänge im Gesamtprozeß haben.⁸

In großen Reaktoren (viele, u.U. hunderte Kubikmeter) können Zirkulationszeiten von bis zu einer Minute auftreten. Für konzentrierte, vitale Bakterienkulturen liegt das Verhältnis aus Löslichkeit und volumetrischer Verbrauchsrate für Sauerstoff bei wenigen Sekunden. Hier ist also unbedingt mit erheblichen Einflüssen der begrenzten Vermischung im Reaktor auf das Prozeßverhalten zu rechnen.

⁷Wie später noch gezeigt werden wird, hängt der Übertritt von Sauerstoff aus Gasblasen in die Flüssigkeit stark vom Turbulenzgrad in der Flüssigkeit ab (vgl. 4.1.3, auf Seite 59)

⁸Da Bakterien sehr klein sind, haben sie auch ein sehr hohes Verhältnis von Oberfläche zu Volumen. Deswegen sind die zellintern unverzüglich verfügbaren Stoffmengen (z.B. an gelöstem Sauerstoff) verschwindend gering gegenüber den zelleigenen Stoffumsatzraten. Mithin wird der Stoffwechsel praktisch instantan (innerhalb von Sekundenbruchteilen) vom Sauerstoffmangel beeinflusst werden, indem sich z.B. Reduktionsäquivalente ansammeln. Da Enzyme für Gärungsstoffwechselwege häufig konstitutiv sind (d.h. bedingungslos exprimiert werden), werden aus den Reduktionsäquivalenten ohne weitere Verzögerung Gärungsprodukte gebildet und ausgeschieden.

1.3.3 Modellerweiterungen

Wie gerade gezeigt wurde, unterliegen also viele, vor allem aerobe Bioprozesse in großen begasten Rührkesseln, erheblichen Einflüssen aus der begrenzten Vermischung (vor allem der Flüssigkeitsphase) im Reaktor. Um also mit einem mathematischen Modell genaue Voraussagen über die Leistungsfähigkeit einer Anlage zu machen, müssen diese Einflüsse im mathematischen Modell berücksichtigt werden.

Verschiedene Ansätze werden verfolgt, um die Auswirkungen begrenzter Vermischung im Reaktor in Reaktor- und Prozeßmodelle zu integrieren. Insbesondere in analytische Modelle wird eine eindimensionale, begrenzte Rückvermischung eingeführt. Analog zur Formulierung der Diffusion nach dem FICKschen Gesetz wird ein *Dispersionsmodell* aufgestellt. Es beschreibt z.B. für hohe, schlanke Turmreaktoren die begrenzte Rückvermischung in axialer Richtung mit einem zusätzlichen, scheinbaren Diffusionskoeffizienten (*axiales Dispersionsmodell*). Die Modellgleichungen werden dadurch natürlich komplizierter, aber u.U. immer noch analytisch handhabbar.

Eine andere Vorgehensweise ist das Aufteilen mehrstufiger Apparate (z.B. Rührkessel mit mehreren Rührern, die jeder für sich ein eigenes Rezirkulationssystem verursachen) in mehrere *Kompartimente*. Für jedes dieser Kompartimente werden eigene Bilanzen aufgestellt, zwischen den Kompartimenten finden begrenzte Austauschvorgänge (Stoff, Wärme,...) statt. Aus entsprechenden Experimenten werden Zahlenwerte für die Parameter zur Beschreibung dieser Austauschvorgänge ermittelt; es entsteht ein sog. Modell mit verteilten Parametern. Ein derart aufgestelltes Modell entzieht sich häufig einer analytischen Lösung – es muß dann mit numerischen Methoden im Computer behandelt werden.

1.3.4 Strömungssimulation

Eine moderne Technik ist diejenige, von numerischer Strömungssimulation auszugehen:⁹ Hierbei wird das Reaktorvolumen in *sehr viele* „Kompartimente“ (Kontrollvolumina) unterteilt, und durch numerische Behandlung von Massen- und Impulsbilanzen kann das genaue (turbulente) Strömungsbild im Reaktor vorausgesagt werden. Das ergibt direkt die Parameter zur Beschreibung weiterer Austauschvorgänge (Stoffströme) zwischen den einzelnen Kontrollvolumina.

Anschließend kann ein (gemäß Abschnitt 1.2.3 [S. 4] aufgestelltes) analytisches Modell in jedem einzelnen Kontrollvolumen numerisch „simuliert“ werden, wobei die aus dem berechneten Strömungsfeld gewonnen Parameter für die Beschreibung aller Transportvorgänge mit einbezogen werden. Abhängig von der Qualität des analytischen Modells für z.B. eine chemische Reaktion lassen sich so genaue Voraussagen über Prozesse in extrem inhomogen betriebenen Reaktionsräumen machen.¹⁰

1.4 Maßstabsvergrößerung

Neue industrielle Prozesse werden grundsätzlich zuerst im Labormaßstab (Reaktoren bis maximal 1 Liter Arbeitsvolumen) entwickelt und voroptimiert. Zur wirtschaftlichen Fahrweise im großtechnischen Maßstab muß dann auf Reaktoren mit viel größeren Arbeitsvolumina (viele Kubikmeter) übergegangen werden. Hierzu bedient man sich häufig dimensionslos formulierter Korrelationen und baut die Produktionsreaktoren geometrisch ähnlich zu (experimentell genau untersuchten) Labor- und Technikumsreaktoren unterschiedlicher Größen (einschließlich des Zwischenschrittes einer Pilotanlage).

⁹Details der numerischen Strömungssimulation werden in Abschnitt 4.2 auf Seite 65 beschrieben.

¹⁰Ein Beispiel hierfür ist z.B. die Simulation von Flammen in geometrisch komplizierten Brennräumen.

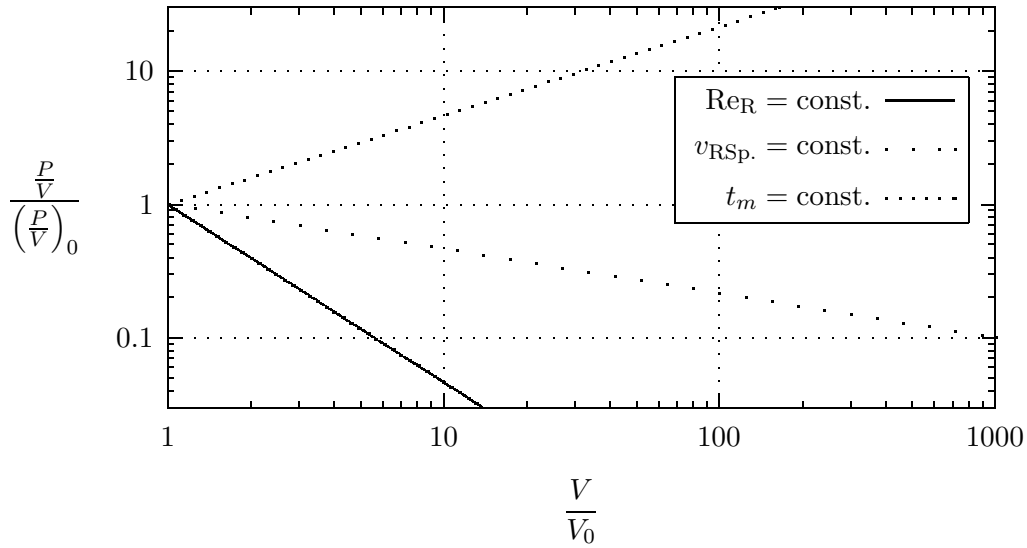


Abbildung 1.1: Die Veränderung des spezifischen (volumenbezogenen) Leistungseintrages $\frac{P}{V}$ mit dem Volumenmaßstab bei Anwendung verschiedener scale-up-Kriterien, nämlich bei Konstanthaltung der Mischzeit t_m , der Rührerspitzen Geschwindigkeit $v_{RSp.}$ oder Rührer-REYNOLDS-Zahl Re_R .

Bei der Wahl der Betriebsparameter für die Großanlage versucht man dann, alle Einflußgrößen (-*verhältnisse*) gleich denjenigen im Technikumsapparat oder der Pilotanlage einzustellen. Das ist aber unmöglich – man kann nicht gleichzeitig die Reynoldszahl (Strömungsregime, laminar-turbulent), die Rührerspitzen Geschwindigkeit (maximale Scherkräfte) und die Mischzeit (bestimmend für sich ausbildende Inhomogenitäten) konstant halten. Das sog. PENNEY-Diagramm in Abbildung 1.1 zeigt, wie sich der spezifische (volumenbezogene) Leistungseintrag bei einer Maßstabsvergrößerung unter Konstanthaltung jeder der drei genannten Größen mit dem Volumen verändert.

Solange die Zirkulationszeit aber nicht konstant gehalten wird, werden sich, gemäß dem oben gesagten, im größeren Reaktor stärkere Inhomogenitäten mit stärkeren Auswirkungen auf den Gesamtprozeß ausbilden. Die Konstanthaltung der Zirkulationszeit ist aber, ähnlich wie für die Mischzeit, wegen der enorm anwachsenden Energiekosten und des begrenzten Energieeintragsvermögens eines jeden Rührorgans vor allem bei Begasung nicht praktikabel. Mithin sollte über Alternativen zur genannten Methode der geometrisch ähnlichen Maßstabsvergrößerung nachgedacht werden.

1.4.1 Beispiel: Emulsion

Ein anschauliches Beispiel für eine moderne Strategie zur Maßstabsvergrößerung wurde für die Herstellung von Emulsionen beschrieben [291]. Hier wirken zwei konkurrierende Mechanismen gegeneinander: In unmittelbarer Rührernähe werden, durch die dort auftretenden höchsten *turbulenten* Scherkräfte, große Tropfen in viele kleine Tropfen zerteilt. Außerhalb des Rührernahbereiches koaleszieren die vielen kleinen Tropfen wieder zu wenigen großen mit entsprechend reduzierter spezifischer Grenzfläche. Aufgabe des Reaktors im Prozeß war die Herstellung und Aufrechterhaltung einer hinreichenden spezifischen Phasengrenzfläche.

Hierzu soll zum einen der volumetrische Leistungseintrag ($\frac{P}{V}$) konstant gehalten werden, um

die notwendigen turbulenten Scherkräfte in Rührernähe zu garantieren. Zum anderen soll die Zirkulationszeit (t_c) der Emulsion konstant gehalten werden, damit die Verweilzeit in turbulenzarmen, koaleszenzfördernden Teilbereichen sich nicht vergrößert. Neben der Rührerdrehzahl n ist für den Großreaktor, abweichend von vollständiger geometrischer Ähnlichkeit, ein neues Durchmesser Verhältnis $\frac{d}{D}$ (Rührer zu Rührbehälter) zu ermitteln.

Ein Berechnungsansatz für die Zirkulationszeit ergibt sich aus dem Verhältnis von Reaktorvolumen ($V \sim D^3$) zu Rührerpumpleistung¹¹ ($\dot{V}_R \sim n \cdot d^3$):

$$t_c \sim \frac{D^3}{n \cdot d^3} \quad (1.4 - 2)$$

Der volumetrische („spezifische“¹²) Leistungseintrag ergibt sich, z.B. aus dimensionsanalytischer Betrachtung, gemäß folgender Beziehung:¹³

$$\frac{P}{V} \sim \frac{n^3 \cdot d^5}{D^3} \quad (1.4 - 3)$$

Diese beiden charakteristischen Größen (t_c und $\frac{P}{V}$) sind bei der Maßstabsvergrößerung konstant zu halten. Wählt man für Labor- und Produktionsreaktor die Indizes 1 und 2, so ergeben sich folgende Regeln für die Anpassung von Rührerdurchmesser d und -drehzahl n bei der Maßstabsvergrößerung (die genaue Herleitung dieser Regeln ist im Anhang dargestellt, vgl. Abschnitt D.2 auf Seite 197):

$$\frac{d_1}{d_2} = \left(\frac{D_1}{D_2} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (1.4 - 4)$$

$$\frac{n_1}{n_2} = \left(\frac{D_1}{D_2} \right)^{-\frac{3}{2}} \quad (1.4 - 5)$$

1.4.2 Genauere Voraussagen

Normalerweise liegen viele Größen und Größenverhältnisse, die über Durchsatz und Ausbeute eines Rührreaktorprozesses bestimmen, für Laborreaktoren in ganz anderen Bereichen als für große Produktionsreaktoren. Die Anwendung von (halbempirischen) Korrelationen, die mit Laborreaktoren gewonnen wurden, bei der Planung und Dimensionierung einer Produktionsanlage bleibt also riskant. Diese Unsicherheit läßt sich nur durch das experimentelle Verifizieren der Korrelationen im Produktionsreaktor ausräumen.

Solche Experimente im Produktionsreaktor erfordern dessen reale Existenz; sie kosten außerdem Zeit und große Mengen u.U. teurer Rohstoffe. Deswegen wird bei der Planung neuer Anlagen gerne auf bewährte Konzepte zurückgegriffen, solange der neue Prozeß hinreichende Ähnlichkeiten mit einem bestehenden hat, von dem man dann die Erfahrungen überträgt. Dies führt aber dazu, daß nicht jeder Prozeß wirklich in einem maximal optimierten Reaktionsbehälter stattfindet.

Hier bietet die Computersimulation neue Möglichkeiten: Mit der numerischen Strömungssimulation können die laminaren oder turbulenten Strömungsverhältnisse in bisher nicht existierenden Reaktoren beliebiger Größe vorausgesagt werden. Ausgehend von Geometrie, Stoffeigenschaften und Drehzahl bedient sich diese Technologie physikalisch und mathematisch rigoroser Methoden

¹¹Dies ist eigentlich keine „Leistung“ (Arbeit je Zeit), sondern ein Volumenstrom (Volumen je Zeit).

¹²Das Wort „spezifisch“ ist eigentlich für *massenbezogene* Größen reserviert, wird aber beim Leistungseintrag nach allgemeiner Konvention auf eine *volumenbezogene* Größe angewendet.

¹³Eine anschauliche Herleitung dieses Ausdruckes für die Rührerleistung wird im Anhang vorgestellt (vgl. Abschnitt D.1, auf Seite 197).

für die Vorausberechnung räumlich hochaufgelöster Druck-, Geschwindigkeits- und Turbulenzfelder.

Diese Daten können dann als Grundlage dienen für eine räumlich ebenso hochauflösende, verteilparametrische Simulation der weiteren, strömungs- und/oder turbulenzabhängigen Reaktions- und Austauschprozesse. In jedem Kontrollvolumen, von denen u.U. mehr als eine Million für die detaillierte räumliche Darstellung eines Reaktors dienen, werden Stoffströme, Reaktionen und Austauschvorgänge mit analytischen Modellen (Differentialgleichungen) beschrieben und bilanziert. Als Ergebnis erhält man genaue Voraussagen für das Verhalten des Prozesses im integral betrachteten Reaktor.

1.5 Aufgabenstellung

Am Ende von Abschnitt 1.3.2 (Seite 6) wurde aufgezeigt, daß insbesondere aerobe Bioprozesse in großen Rührkesselreaktoren unter dem Verdacht stehen, von Inhomogenitäten im Reaktionsvolumen negativ beeinflusst zu werden. Diese Inhomogenitäten wachsen mit dem Reaktorvolumen¹⁴ und werden deshalb besonders bei der Maßstabsvergrößerung zunehmend relevant. Auf der anderen Seite verringert sich z.B. der Beitrag der freien Oberfläche zum Sauerstoffeintrag nachhaltig bei der Maßstabsvergrößerung [134].

Die genannten Inhomogenitäten bedeuten die gleichzeitige Existenz unterschiedlicher Sauerstoffkonzentrationen an unterschiedlichen Stellen in demselben Reaktionsbehälter. Man kann erwarten, daß hiervon besonders leicht solche Prozesse betroffen sind, die ohnehin bei *geringen Gelöstsauerstoffkonzentrationen* gefahren werden. Dies sind insbesondere sog. *mikroaerobe* Prozesse. Hier wird zwar kontinuierlich mit Sauerstoff bzw. Luft begast, aber so begrenzt, daß ständig Sauerstofflimitierung herrscht. Die Gelöstsauerstoffkonzentrationen sind generell sehr gering.¹⁵

In begasten Rührkesselreaktoren sind die disperse Gasphase und der Sauerstoffübertritt in die Flüssigkeit nie homogen im Reaktionsvolumen verteilt. Ein überwiegender Anteil des Stoffaustausches findet im vergleichsweise hochturbulenten Bereich in unmittelbarer Nähe des Rührers statt. In der Reaktorperipherie findet demgegenüber vorwiegend Sauerstoffverbrauch durch die gleichmäßig in der Suspension verteilten Bakterien statt. Ausgehend von der Überlegung, daß während der Dauer einer mittleren Zirkulationszeit ein Vielfaches der geringen Sauerstoffkonzentration verbraucht werden kann, die für mikroaerobe Prozesse charakteristisch ist, muß man also mit massiven Inhomogenitätseinflüssen gerade bei solchen mikroaeroben Prozessen in großen Reaktoren rechnen.

1.5.1 Numerische Simulation

Die Modellierung, also *Voraussage* der Konzentrationsprofile für Gelöstsauerstoff in solchen Prozessen ist das Ziel der hier beschriebenen Arbeiten. Es soll zunächst mit Hilfe einer numerischen Strömungssimulation in dem kommerziellen Programm FLUENT das turbulente, mehrphasige Strömungsfeld (von Flüssigkeit *und* Gasblasen) in einem begasten Rührkesselreaktor ermittelt werden. Auf diesen Ergebnissen aufbauend wird ortsaufgelöst der Sauerstoffaustausch (Gas-Flüssigkeit) und -transport (in der Flüssigkeit) im Reaktor berechnet. In Verbindung mit einem

¹⁴Das Ausmaß der Inhomogenitäten hängt direkt von der Zirkulationszeit ab – deren Konstanzhaltung würde bei der Maßstabsvergrößerung zu unververtretbaren Energieeinträgen führen und wird deswegen nie erreicht.

¹⁵Sie können deswegen nicht mehr als direkte Regelgröße bei der Prozeßführung dienen; statt dessen werden über kompliziertere Regelalgorithmen abgeleitete Größen wie die spezifische Sauerstoffaufnahme oder der respiratorische Quotient als Regelgrößen für die Begasung verwendet.

(einfachen) kinetischen Modell für den Sauerstoff*verbrauch* kann die Simulation schließlich stationäre Konzentrationsprofile für den Gelöstsauerstoff im wäßrigen Kulturmedium voraussagen. Räumliche Bereiche mit ausgeprägtem Sauerstoffmangel sowie solche mit besonders *hohen* Sauerstoffkonzentrationen können identifiziert werden, und es kann schließlich gezeigt werden, welchen zeitlichen Schwankungen der umgebenden Sauerstoffkonzentration ein suspendiertes Bakterium im untersuchten Prozeßzustand ausgesetzt ist.

Mit dem entwickelten Gesamtmodell läßt sich für bisher *nicht* existierende Reaktor- und Rührergeometrien voraussagen, welche Konzentrationsprofile für den Gelöstsauerstoff im Reaktor sich einstellen werden. So lassen sich insbesondere Maßstabsvergrößerungen vorausberechnen und unterschiedliche Konzepte hinsichtlich ihrer voraussichtlichen Tauglichkeit vergleichen. Nach einer Verifizierung der Brauchbarkeit dieser neuen Modellierungsmethode kann sie z.B. bei der Entwicklung und Maßstabsvergrößerung aerober Bioprozesse hin zum vollen Produktionsmaßstab eingesetzt werden. Geometrische Varianten und Veränderungen der Prozeßfahrweise (Begasungsrate, Drehzahl, ...) können in „*numerischen Experimenten*“ auf ihre Auswirkungen hin untersucht werden, ohne daß überhaupt ein entsprechender Reaktor existieren muß.

1.5.2 Besonderheiten

Das in dieser Arbeit entwickelte Gesamtmodell besitzt einige markante Unterschiede gegenüber bereits veröffentlichten, vergleichbaren Lösungsansätzen:

- Die numerische Berechnung der Flüssigkeitsströmung im Reaktor geht ausschließlich von Geometrie, Stoffeigenschaften und Betriebsparametern (Drehzahl) aus. Sie erfordert keinerlei Strömungsmeßwerte für den verwendeten Rührertyp, wie dies bei der weit verbreiteten Anwendung sogenannter „Rührerersatzmodelle“ in der numerischen Strömungssimulation der Fall ist.
- Die Berechnung des Strömungsfeldes für die disperse Gasphase (Blasen) geschieht in einer LAGRANGESchen Betrachtungsweise, d.h. es werden (turbulenzbeeinflusste) *Blasentrajektorien* berechnet.
- Bei der Strömungssimulation für die disperse Gasphase wird nicht eine konstante Blasengrößenverteilung angenommen, sondern die turbulenzabhängige Blasenverteilung (vor allem in Rührernähe) wird im Modell vollständig nachvollzogen.
- In einer dispersen Phase – wie z.B. den Gasblasen im begasten Rührkesselreaktor – können Fluidelemente (Blasen) unterschiedlicher Zusammensetzung gleichzeitig und in unmittelbarer räumlicher Nähe nebeneinander existieren. Auf Grund der LAGRANGESchen Betrachtungsweise im entwickelten Modell kann das zeitliche und räumliche Nebeneinander frischer, sauerstoffreicher Blasen und lange zirkulierender, sauerstoffverarmerter Blasen uneingeschränkt im Modell erfaßt werden. Es werden keinerlei Annahmen bezüglich der lokalen oder globalen Vermischung einzelner Phasen (oder der Phasen miteinander) gemacht.

Kapitel 2

Grundlagen

2.1 Kennzahlen

Mit Hilfe des BUCKINGHAMschen II-Theorems der Ähnlichkeitslehre [238] (vgl. Gleichung 1.2 - 1, auf Seite 4) und der Dimensionsanalyse [337] (vgl. Abschnitt 1.2.2, auf Seite 4) lassen sich einige fundamentale Korrelationen zur Beschreibung der Vorgänge und Zusammenhänge in Rührbehältern aufstellen. Hierin treten bestimmte dimensionslose Kennzahlen in Erscheinung, die zur Charakterisierung von Rührern dienen können. Sie sind Proportionalitätsfaktoren in dimensionsanalytisch aufgestellten Korrelationen.

2.1.1 Förderleistung

Die sog. „Pumpleistung“ eines Rührers ist der Flüssigkeitsvolumenstrom \dot{V}_R , den der Rührer bei einer bestimmten Drehzahl n , ähnlich dem Rotor einer Pumpe, fördert. Aus einer Dimensionsbetrachtung ergibt sich unmittelbar folgende Korrelation:¹

$$\dot{V}_R = B_{\dot{V}_R} \cdot d^3 \cdot n \quad (2.1 - 1)$$

Hierin sind d der Durchmesser und n die Drehzahl des Rührers (Umdrehungen je Sekunde). Der Proportionalitätsfaktor $B_{\dot{V}_R}$ wird auch als Pumpkennzahl N_{Pu} des Rührers bezeichnet und hängt von den Proportionen des Rührers ab. Sie gilt außerdem nur jeweils in bestimmten Bereichen, in denen ein und dasselbe Strömungsregime (laminar oder turbulent) herrscht; dadurch hängt der Faktor auch von Stoffparametern ab. Literaturwerte für die Pumpkennzahl von Sechs-Blatt-Scheiben-Rührern (6BSR, „RUSHTON *disc turbine*“) liegen im Bereich zwischen 0,5 und 1 [261].

2.1.2 Leistungseintrag

Für den mechanischen Leistungseintrag P eines Rührers gilt die folgende Beziehung (hergeleitet im Anhang D.1; vgl. Gleichung D.1 - 7, auf Seite 197):

$$P = Ne \cdot \rho \cdot n^3 \cdot d^5 \quad (2.1 - 2)$$

Hierin ist Ne die Leistungs- oder NEWTONkennzahl. Diese dimensionslose Proportionalitätskonstante ist charakteristisch für den Rührer, aber im voll turbulenten Strömungsregime unabhängig von seiner Größe, Drehzahl und den Eigenschaften des gerührten Fluides.

¹Die Formelzeichen und dimensionslosen Kennzahlen sind im Symbolverzeichnis in Anhang C (Seite 185) erklärt.

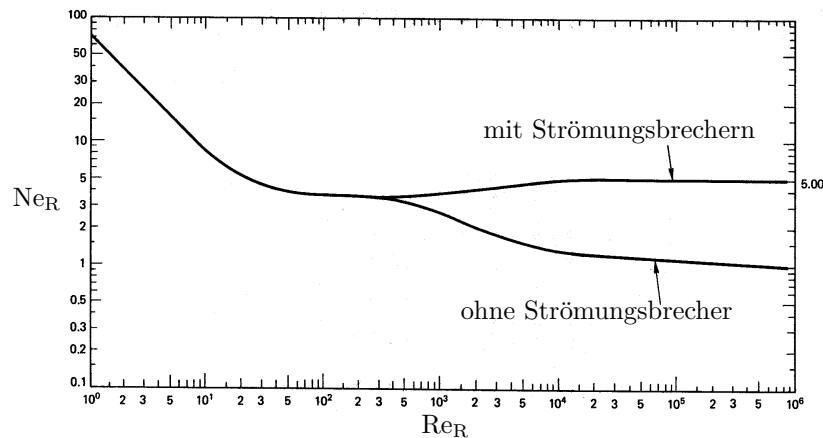


Abbildung 2.1: Die Leistungs- (NEWTON-) kennzahl eines 6BSR (Ordinate) in Abhängigkeit von der Reynoldszahl des Rührers (Abszisse) [156]. Im rechten Teil zwei Kurvenäste: Der obere für Reaktoren mit, der untere ohne Strömungsbrecher.

Im laminaren Bereich sowie im schwach turbulenten Übergangsbereich hängt die NEWTONzahl aber von Rührerdurchmesser, Drehzahl und Viskosität der Flüssigkeit ab. Diese drei Abhängigkeiten können zu einer dimensionslosen Gruppe zusammengefaßt werden, der Rührer-REYNOLDS-Zahl:²

$$\text{Re}_R = \frac{n \cdot d^2 \cdot \rho}{\mu} = \frac{n \cdot d^2}{\nu} \quad (2.1 - 3)$$

Nun läßt sich *unabhängig* von der tatsächlichen Größe des Rührers eine eindeutige Abhängigkeit der NEWTONzahl von der REYNOLDSzahl angeben. Im rein laminaren Bereich ist die NEWTONzahl umgekehrt proportional zur REYNOLDSzahl; im rein turbulenten Bereich ist die NEWTONzahl eine für die Rührerbauart charakteristische Konstante.

Ob die Strömung am Rührer laminar, turbulent oder in einem Übergangsbereich ist, hängt vom Zahlenwert der REYNOLDSzahl ab. Diese Kennzahl wird als der Quotient aus Trägheitskräften und Zähigkeitskräften bezeichnet: Ist die Zähigkeit (im Nenner) groß, überwiegt sie andere wirkende Kräfte, und dämpft entstehende Wirbel. Ist die Viskosität klein, können Trägheitskräfte z.B. an Stellen, wo scharfe Kanten umströmt werden (am Rührerblatt!) überwiegen und zu Strömungsablösung, Wirbelbildung und damit zur Turbulenz führen. Siehe hierzu Abschnitt 4.1.1 auf Seite 54.

Den Verlauf der NEWTONzahl in Abhängigkeit von der Rührer-REYNOLDS-Zahl zeigt Abbildung 2.1 für Reaktoren mit (obere Kurve) und ohne Strömungsbrecher. Im laminaren Bereich (linker Kurvenast) haben die Strömungsbrecher keinen Einfluß auf die Leistungskennzahl des Rührers.

2.1.3 Mischzeit und -charakteristik

Der Hauptzweck des Rührens in einphasigen Systemen, sowie ein wesentlicher Zweck auch beim mehrphasigen Rühren, ist die *Vermischung* des Behälterinhalts. Die Effizienz, mit der der Rührer diesen Zweck erfüllt, wird häufig über die *Mischzeit* quantifiziert. Die Mischzeit t_m ist diejenige Zeit, die ein Rührer braucht, um nach einer lokalen Störung (z.B. Zugabe einer kleinen Menge

²Diese REYNOLDSzahl ist eine Sonderform der allgemeinen REYNOLDSzahl, die über *Geschwindigkeit*, charakteristische Länge und Viskosität definiert wird: $\text{Re} = v \cdot l \cdot \rho / \mu$.

markierter Flüssigkeit) einen bestimmten Grad an Homogenität herzustellen [255]. Die Angabe einer Mischzeit ist nur dann sinnvoll und brauchbar, wenn sie von einer Angabe des geforderten Homogenitätsgrades begleitet wird.

Die Messung von Mischzeiten ist ein viel diskutiertes Thema, dessen Standardisierung wichtig, aber schwierig ist. Am einfachsten ist es, nach der lokalen Zugabe eines Spurstoffes dessen Konzentration kontinuierlich an einer bestimmten Stelle im Reaktor zu verfolgen. Die Mischzeit ist dann diejenige Zeit, die vergeht, bis sich das Detektorsignal bis auf einen gewissen Prozentsatz (1 - Homogenitätsgrad) an den stationären Endwert angenähert hat. Verschiedene andere, aufwendigere Definitionen werden in der Literatur beschrieben [251, 273].

Mischzeitcharakteristik. Die Mischzeit t_m kann mit der Drehzahl n zu einer einfachen dimensionslosen Gruppe $\Theta = t_m \cdot n$ zusammengefaßt werden. Da diese Zahl die Rührerbauform maßstabsunabhängig charakterisiert, wird sie oft als *Mischzeitcharakteristik* bezeichnet. Diese Zahl kann anschaulich interpretiert werden als die Anzahl von Rührerumdrehungen, die vergehen, bevor die jeweils geforderte Homogenität erreicht ist. Die Zahl ist im rein laminaren und im rein turbulenten Bereich jeweils eine Konstante; der Wert für den laminaren Bereich ist höher als der Wert für den turbulenten Bereich [86]. Dies zeigt, daß Turbulenz einen zusätzlichen Beitrag zur Vermischung leistet, so daß eine geringer Anzahl von Umdrehungen zum Erreichen derselben Homogenität ausreicht. Nach ZLOKARNIK (1967) ist Θ im turbulenten Bereich ($Re_R > 10^4$) keine Konstante, sondern proportional zu $Re_R^{0,7}$ [336]. Dieser Widerspruch zur vorher zitierten Literaturstelle [86] kann u.a. von unterschiedlichen Definitionen oder Meßvorschriften für die Mischzeit herrühren.³

2.1.4 Zirkulationszeit

Ein ähnliches Zeitmaß zur Charakterisierung von Mischvorgängen (bzw. Apparaten und Rührorganen) ist die *Zirkulationszeit* t_c [142]. Sie bezeichnet die Zeit, die ein Fluidelement braucht, nachdem es den Rührer in dessen Auswurfströmung verlassen hat, um von dort ausgehend durch die Reaktorperipherie zu laufen und wieder zum Rührorgan zurückzukehren. Diese Zirkulationszeit ist in Rührkesseln keine Konstante, sondern eine verteilte Größe.⁴ Zur Definition der Zirkulationszeit existieren verschiedene Vorschläge in der Literatur; sie bestehen in der Verhältnisbildung aus charakteristischer Länge und Geschwindigkeit [142] bzw. Reaktorvolumen und (vom Rührer gefördertem) Volumenstrom [187, 291].

Nimmt man im Rührbehältern *Segregation* in der Form an, daß Fluidelemente durch den Reaktor zirkulieren, die nur im höberturbulenten Rührernahbereich aufgelöst werden und Stoff miteinander austauschen [14], so ist die Zirkulationszeit (-verteilung) gleich der Lebensdauer (-verteilung) der Fluidpakete. Bei der Übertragung eines neu entwickelten Prozesses in den Produktionsmaßstab ergibt sich i.d.R. ein massives Ansteigen der Zirkulationszeit (vgl. Abschnitt 1.4, auf Seite 7⁵), dessen mögliche Auswirkungen hiermit deutlich werden.

³Neben der Art der Spurstoffzugabe sowie Anzahl und Position der Detektionsstellen kann auch die Detektionsmethode Einfluß auf die Meßergebnisse haben. Bestimmte chemische Reaktionen laufen z.B. mit veränderter Kinetik ab, wenn die Vermischung nicht von großräumigen Skalen vollständig bis auf molekulare Größenordnungen durchgeht (Mikrovermischung), sondern nur relativ große Fluidelemente miteinander vermengt werden (Makrovermischung, Segregation).

⁴Deswegen wird die Zirkulationszeit [-verteilung] im englischen Sprachgebrauch häufig auch als "*residence time [distribution]*" bezeichnet.

⁵Das dort abgebildete PENNEY-Diagramm (Abbildung 1.1, auf Seite 8) demonstriert, daß bei Konstanthaltung der Mischzeit im "*scale-up*" der spezifische (volumetrische) Leistungseintrag erheblich ansteigt. Wegen der hierfür aufzubringenden Kosten wird diese Strategie zur Maßstabsvergrößerung nur selten eingesetzt.

So wie die Mischzeitcharakteristik (s. Abschnitt 2.1.3, auf Seite 15) die Anzahl Rührerdrehungen innerhalb der Mischzeit angibt, so ist auch die Anzahl Zirkulationszeiten innerhalb der Mischzeit eine charakteristische Größe für jeden Rührvorgang. Ähnlich wie für die Mischzeitcharakteristik gilt auch hier, daß die Anzahl (mittlerer) Zirkulationszeiten zur Erreichung eines vorgegebenen Homogenitätsgrades im turbulenten Strömungsregime geringer ist als im laminaren, weil Turbulenz zusätzliche Vermischung verursacht.

2.2 Begasung

Wie in der Einleitung dargestellt, erfordern viele Prozesse in der chemischen Verfahrenstechnik und der Biotechnologie eine kontinuierliche Blasenbegasung (s. Abschnitt 1.1.2, auf Seite 2). Der Stoffaustausch durch die freie Flüssigkeitsoberfläche unter dem Gas im Reaktorkopf ist, insbesondere in größeren Reaktoren, zu gering (vgl. Abschnitt 1.5, auf Seite 10). Die verschiedenen blasenbegasten Reaktorgrundtypen wurden bereits vorgestellt (s. Abschnitt 1.1.3, auf Seite 2); im folgenden werden nur noch begaste Rührkesselreaktoren betrachtet, und hierin speziell die Eigenschaften und Auswirkungen der dispersen Gasphase.

2.2.1 Strömung

Das grundsätzliche Strömungsbild der dispersen Gasphase hat für alle Rührkessel gewisse Gemeinsamkeiten: Unten im Reaktor wird ein Begaser installiert, der aus einem oder mehreren Löchern (bzw. [seltener] einer porösen Oberfläche) Blasen mit einer gewissen Größenverteilung (abhängig von Gasstrom und Flüssigkeitsströmung) freisetzt. Die Blasen steigen mit einer gewissen *Relativgeschwindigkeit* zur umgebenden Flüssigkeit senkrecht nach oben (bezogen auf die umgebende Flüssigkeit) auf. Die Relativgeschwindigkeit ist für kleine, sphärische Blasen proportional zur Blasengröße. Für größere Blasen treten Formveränderungen auf (von elliptisch bis Kugelkappe), so daß die Blasenauftiegs geschwindigkeit (*relativ* zur Flüssigkeit) nie über ungefähr 22 cm/s hinaus ansteigt [134].

Über dem Begaser wird meistens ein radial fördernder Scheibenrührer installiert, der die axial aufsteigenden Blasen ansaugt. (Falls axial abwärtsfördernde Rührer eingesetzt werden, werden sie dementsprechend häufig mit einem ganz unten montierten Scheibenrührer kombiniert, damit die Blasen auf jeden Fall einen Rührer passieren.) Am Rührer werden insbesondere größere Blasen durch die dort auftretenden hohen Scherkräfte und Turbulenzgrade in kleinere Fragmente zerteilt (vgl. Abschnitt 4.1.4 auf Seite 62), die als kleine, sphärische Blasen weiterexistieren. In kleinen Blasen herrscht auf Grund der Grenzflächenspannung ein höherer Innendruck $p = 4 \cdot \sigma / d_{\text{Bl}}$. Deswegen können von außen wirkende Kräfte kleine Blasen weniger leicht verformen oder gar zerteilen.

Nach der Passage des Scheibenrührers folgen die Blasen der Flüssigkeitszirkulation, wobei ihre Geschwindigkeit immer eine zusätzliche Aufwärtskomponente besitzt. Kommen Sie in die Nähe der freien Oberfläche, können Sie u.U. mit dieser verschmelzen, was das Ende ihrer Existenz bedeutet. Vorher können aber viele – insbesondere *kleine* – Blasen lange im Reaktorinneren mit der Flüssigkeit zirkulieren.

2.2.2 Koaleszenz

Unmittelbar nach der Blasenzerteilung im rührernahen Bereich können u.U. neue Großblasen entstehen. Kleine Blasen stoßen, je nach Geschwindigkeit und Behälterdurchmesser, entweder auf dem Weg nach außen oder im Bereich der Stagnation und Strömungsumlenkung (in Wandnähe),

aufeinander und verschmelzen (*koaleszieren*) wieder zu größeren Blasen. Dies führt zu einer breiten *Verteilung* der Blasengrößen im Reaktor.

Biotechnologische Medien enthalten immer Salze, sowie meistens auch Alkohole und Tenside. All diese Stoffe beeinflussen erheblich die Mechanismen der Blasenbildung (Zerteilung durch Turbulenz und Koaleszenz nach Kollision). Alkohole und andere Tenside mindern die Grenzflächenspannung, was die Zerteilung auch kleinerer Blasen in noch kleinere Fragmente erleichtert (s. Abschnitt 4.1.4, auf Seite 62). Außerdem haben die hydrophilen Enden vieler Tensidmoleküle ionischen Charakter und tragen elektrische Ladung; Blasen sind dadurch mit einer elektrisch geladenen Hülle umgeben und stoßen einander ab, was die Koaleszenz von Blasen behindert.

Auch gelöste anorganische Ionen haben, obwohl sie die Grenzflächenspannung nicht verändern, eine stark inhibierende Wirkung auf die Blasenkoaleszenz. Dieser Effekt setzt beim Steigern der Salzkonzentration schlagartig bei einer bestimmten kritischen Konzentration ein; ein weiteres Steigern der Konzentration hat darüberhinaus keinen weiteren Effekt auf die Blasengröße [184].

Die beschriebenen Mechanismen führen zu der experimentellen Beobachtung, daß in Lösungen der genannten Substanzklassen viel kleinere mittlere Blasendurchmesser (s.u.) gefunden werden als in hochreinem Wasser. Schon Spuren von (vor allem tensidischen) Verunreinigungen beeinflussen nachhaltig das Koaleszenzverhalten. In vollständigen biotechnologischen Medien, wie Sie auch in den Experimenten in dieser Arbeit eingesetzt wurden (vgl. Abschnitt 6.8.2, auf Seite 135) kann die Koaleszenz ohne große Fehler vernachlässigt werden.

In vollständig koaleszenzunterdrückenden Stoffsystemen wurde gezeigt, daß die durch turbulente Blasenzerlegung (s.u.) erzeugte Blasengrößenverteilung im Ausströmbereich des Rührers unverändert in anderen Teilen des Reaktors wiederzufinden ist [236]. Koaleszenz wird deswegen im Rest der vorliegenden Arbeit unbeachtet bleiben.

2.2.3 Größenverteilung

Wie in den vorigen Abschnitten erläutert, sind in biotechnologischen Medien deutlich kleinere (mittlere) Blasendurchmesser zu erwarten als in reinem Wasser. Bevor diese Werte aber diskutiert werden, muß die grundsätzliche Handhabung von Größenverteilungen beleuchtet werden.

2.2.3.1 Mittelwerte, Sauterdurchmesser

Zur Angabe repräsentativer, charakterisierender Werte für den Blasendurchmesser werden Mittelwerte gebildet. Dabei werden zwei unterschiedliche Methoden verwendet.

Die anschaulichste Mittelwertbildung ist der arithmetische Mittelwert, der die Summe aller Einzelwerte d_i durch die Anzahl n der Meßwerte teilt:

$$d_{10} = \frac{\sum_i^n d_i^1}{\sum_i^n d_i^0} = \frac{\sum_i^n d_i}{n} \quad (2.2 - 4)$$

Blasen werden erzeugt, um Stoffaustausch zu ermöglichen; für den Stoffaustausch ist die *Grenzfläche* wesentlich. Deswegen wird bei der Bildung des gemittelten Blasendurchmesser häufig nach der Blasenoberfläche *gewichtet*. Man erhält den sog. SAUTERdurchmesser:

$$d_{32} = \frac{\sum_i^n d_i^3}{\sum_i^n d_i^2} \quad (2.2 - 5)$$

Dieser Durchmesser entspricht dem gemittelten Verhältnis aus Volumen zu Oberfläche. Aus ihm

läßt sich sehr leicht die spezifische (volumenbezogene) Phasengrenzfläche a berechnen:⁶

$$a = \frac{6 \cdot \varepsilon_g}{d_{32}} \quad (2.2 - 6)$$

Vergleich. Der SAUTERdurchmesser gibt, trotz seiner besonderen Eignung in der Verfahrenstechnik, ein verzerrtes Bild von der wahren Blasengrößenverteilung und ihrem charakterisierenden Mittelwert [184]. Wenn alle Blasen genau denselben Durchmesser haben, sind d_{10} und d_{32} identisch. Wenn der Blasendurchmesser aber eine auf beliebige Weise *verteilte* Größe ist, so ist der SAUTERdurchmesser d_{32} generell *größer* als der arithmetische Mittelwert d_{10} .

Wenn z.B. von einer Gesamtheit 90% 0,5 mm groß sind und 10% 1,5 mm groß sind, so ist der arithmetische Mittelwert 0,6 mm. Der SAUTERdurchmesser beträgt aber 1,0 mm, er liegt mittig zwischen den so ungleich mächtigen Klassen [71].

2.2.3.2 Literaturwerte

Blasengrößenverteilungen wurden mehrfach untersucht und veröffentlicht; hierbei wurden sehr unterschiedliche Methoden verwendet. Viele Sonden (Durchstich-Leitfähigkeits-Sonde, optoelektronische Absaugsonden) sind bei der Detektion sehr kleiner Blasen stark limitiert, was zu einer kaum quantifizierbaren Verfälschung der mit ihnen gewonnenen Meßdaten führt [184]. In jüngerer Zeit wurden auch indirekte Ultraschallmeßmethoden entwickelt und eingesetzt [91]. Mit photographischen Verfahren ist es schwierig, repräsentative Stichproben von hinreichender Stückzahl zu erfassen; dies läßt sich seit kurzem mit der vollautomatischen Auswertung von Einzelbildern aus ganzen Filmen verbessern.

In der Literatur werden mittlere Blasendurchmesser und teilweise auch Größenverteilungen in realen biotechnologischen Medien oder gleichwertigen Modellmedien angegeben. Für den SAUTERdurchmesser reichen diese Literaturwerte bis maximal 2mm; für den arithmetischen Mittelwert übersteigen die Literaturwerte kaum 0,5 mm. Die genauen Werte hängen natürlich von den Stoff- und Betriebsparametern ab; die Streuung der Werte ist aber gering, so daß die genannten Zahlen als gute charakteristische Werte gelten können.

Blasen in biotechnologischen Medien, die den angegebenen Durchmesser nicht überschreiten, haben zwei wesentliche Eigenschaften: Zum einen haben sie grundsätzlich in allen beobachtbaren Situationen (wenigstens näherungsweise) Kugelgestalt. Zum anderen ist ihre Oberfläche mit *Kontaminationen* aus Alkoholen und stärkeren Tensiden belegt. Die Oberfläche ist daher *nicht* eine *fluide* Phasengrenze, wie bei Großblasen in gereinigtem Wasser, sondern eine *rigide*, immobile Wand. Dies hat erhebliche Auswirkungen auf den Stoffaustausch [90]

2.2.4 Wirkung am Rührer

Die Ausbildung einer dispersen Gasphase bei der Blasenbegasung einer gerührten Flüssigkeit hat bedeutende Auswirkungen auf den Rührvorgang. Dies soll am Beispiel des Sechs-Blatt-Scheiben-Rührers beschrieben werden.

Im unbegasteten Betrieb existiert hinter jedem Rührerblatt des 6BSR ein Unterdruckgebiet. Wegen der Umströmung der einzelnen Rührerblätter, wie sie Abbildung 2.2 zeigt, liegt hier der

⁶„Spezifisch“ bezeichnet eigentlich *massenbezogene* Größen; der Begriff der „spezifischen Phasengrenzfläche“ a ist aber weit verbreitet und soll deswegen auch hier verwendet werden. Es wird aber ausdrücklich auf die damit verbundene Verwechslungsgefahr hingewiesen! (Der Umrechnungsfaktor zwischen spezifischen und volumenbezogenen Größen ist generell eine Dichte ρ .)

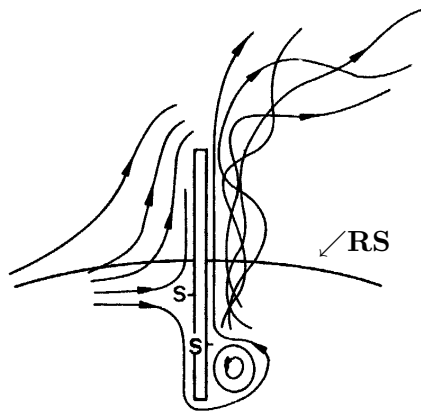


Abbildung 2.2: Die Umströmung eines Rührerblattes am Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer [264]. **RS** bezeichnet den Rand der Rührerscheibe; der Rührer dreht sich im Gegenuhrzeigersinn und bewegt das Blatt von rechts nach links durch das Bild. Die entgegenkommende Strömung ist relativ zum Rührerblatt gezeichnet. **S** bezeichnet Stagnationspunkte an Vorder- und Rückseite des Rührerblattes, an denen die Strömung sich aufspaltet.

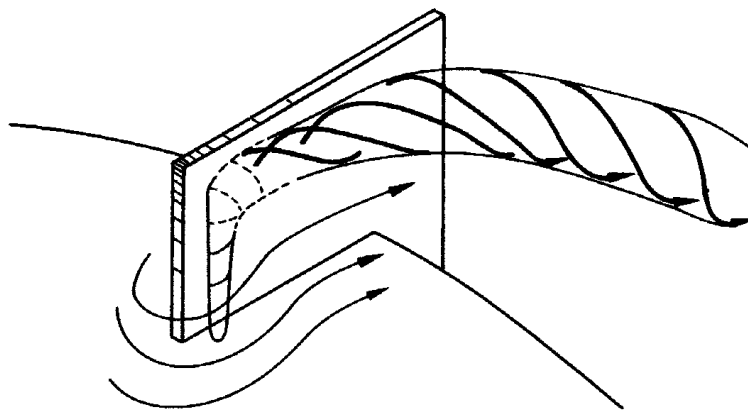


Abbildung 2.3: Die Bildung von schlauchförmigen Wirbeln hinter einem Rührerblatt am Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer [264]; dieselbe Struktur existiert auch auf der im Bild verdeckten Unterseite der Rührerscheibe.

Ausgangspunkt eines Paares zyklonförmiger Wirbel, die auch die Quelle der Turbulenzerzeugung am Rührer sind [171, 264] (s. a. Abbildung 2.3).

Ein Großteil der Gasblasen folgt der in Abbildung 2.2 dargestellten Strömung um das Rührerblatt herum und wird dadurch in den Unterdruckbereich hinter dem Rührerblatt gesogen. Die Blasen gelangen in die von hier ausgehenden Wirbel (Abbildung 2.3) und werden lange darin festgehalten. Dadurch können sie hier in so engen Kontakt miteinander geraten, daß es auch in koaleszenzhemmenden Medien zu Koaleszenz kommt. Es bilden sich größere Gaspolster („Kavitäten“) hinter den Rührerblättern [37, 44, 221, 308]. Diese Gaspolster beeinflussen die Flüssigkeitsströmung und die Förderleistung (Pumpkennzahl, vgl. Abschnitt 2.1.1, auf Seite 13) des Rührers.

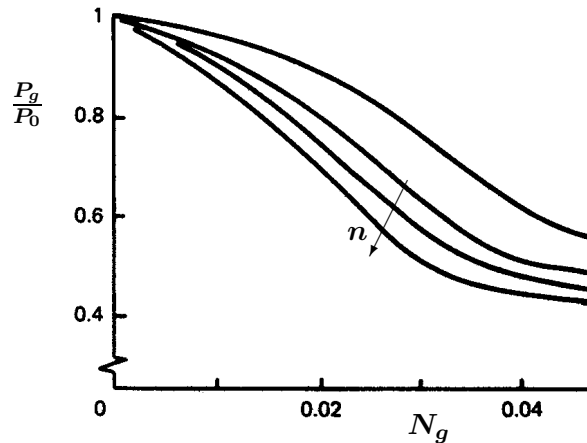


Abbildung 2.4: Die Veränderung des (relativen) Rührerleistungseintrages $\frac{P_g}{P_0}$ mit der Begasungskennzahl $N_g = \frac{\dot{V}_g}{n \cdot d^3}$ [200]. Die unteren drei Kurven gelten für ein Durchmesser Verhältnis [Rührer \Leftrightarrow Tank] von $\frac{d}{D} = 0,38$, bei drei verschiedenen Drehzahlen n . Sie demonstrieren den Einfluß von Blaseneintrag durch die freie Oberfläche auf die Gaskavitäten am Rührer. Für denselben Rührer in einem viel größeren Reaktor ($\frac{d}{D} = 0,111$) gilt für alle drei Drehzahlen genau derselbe Kurvenverlauf (oberster Linienzug; kein Blaseneintrag durch die Oberfläche).

2.2.5 Leistungseintrag

Die Ausbildung der Gaspolster und deren Auswirkungen führen zu einem Abfall des vom Rührer vermittelten mechanischen Leistungseintrages. Dieser Zusammenhang wird gewöhnlich dimensionslos dargestellt: Der Gasvolumenstrom \dot{V}_g , mit dem der Rührer „beladen“ wird, wird durch seine Drehzahl n und die Dritte Potenz seines Durchmessers d geteilt; es ergibt sich die *Begasungskennzahl* N_g :

$$N_g = \frac{\dot{V}_g}{n \cdot d^3} \quad (2.2 - 7)$$

Abbildung 2.4 zeigt einen typischen Verlauf der mechanischen Rührerleistung über der Begasungskennzahl N_g : Bis zu einer gewissen Begasungsrate haben die Blasen keinen merklichen Einfluß auf den Leistungseintrag [183]; sie strömen am Rührer (-Blatt) entlang, ohne hinter den Rührerblättern zu größeren Kavitäten zu koaleszieren [244]. Sobald die Blasendichte hinter den Rührerblättern einen kritischen Wert erreicht, setzt hier Koaleszenz ein, es bilden sich Kavitäten, und die Effizienz des Rührers fällt mit steigender Begasung (und wachsenden Kavitäten) rasch ab [194].

Das Ausmaß des Leistungsabfalls bei Begasung hängt stark von der Rührergeometrie ab [50]. Eine Verkleinerung der Rührerscheibe mindert den Leistungsabfall bei Begasung; den gleichen Effekt haben die speziell geformten (gebogenen) Rührerblätter der Scaba AB-[129] und „Hohlblatt“-Rührer („SMITH turbine“).

2.2.6 Strömung, Vermischung

Es wurde gefunden und bestätigt [20, 271], daß die Strömungsgeschwindigkeiten im Bereich des Rührers um den gleichen Faktor herabgesetzt werden wie der Leistungseintrag P . Dies muß also

entsprechend auch für die Förderleistung \dot{V}_R des Rührers gelten (vgl. Abschnitt 2.1.1, auf Seite 13):⁷

$$\frac{\dot{V}_R^g}{\dot{V}_R} = \frac{P_g}{P_0} \quad (2.2 - 8)$$

Aus der verminderten Strömung im Reaktor folgt eine erhöhte Durchmischungszeit t_m . In einem 350 L fassenden Reaktor wurde folgende Relation zwischen den Durchmischungszeiten t_m^g mit und t_m ohne Begasung gefunden [88]:

$$\frac{t_m^g}{t_m} = 1 + 7,5 \cdot w_{g0}^{0,27} \cdot \varepsilon_g \quad (2.2 - 9)$$

Die Größe w_{g0} ist die *Leerrohrgeschwindigkeit* des Gases; dies ist der Quotient aus dem Gasvolumenstrom \dot{V}_g und der (horizontalen) Querschnittsfläche des Reaktors. Das Symbol ε_g bezeichnet den *relativen Volumenanteil* der dispersen Gasphase im Reaktorinhalt.

Die Abhängigkeit des Quotienten auf der linken Seite der Gleichung von der *Begasungsintensität* hat im Endeffekt einen wesentlich höheren Exponenten als 0,27, weil der Gasvolumenanteil ε_g seinerseits stark von der Begasung abhängt. (Vgl. hierzu Abschnitt 2.3.1.2, auf Seite 23.) Weitere Autoren bestätigen die Korrelation [233].

Die Mischzeit kann als Abhängige vom spezifischen Leistungseintrag ausgedrückt werden (vgl. Abschnitt 2.1.3, auf Seite 15). Die Begasung beeinflusst den Leistungseintrag des Rührers (s. Abschnitt 2.2.5); die Änderung der Mischzeit kann vollständig auf diesen Effekt zurückgeführt werden [256].

2.3 Stoffübertragung

Begaste Rührreaktoren sollen einen effektiven Eintrag von Sauerstoff in die Flüssigkeit ermöglichen [69]. Zur Quantifizierung ihrer diesbezüglichen Leistungsfähigkeit dient der volumetrische Stoffaustauschkoeffizient $\beta_l a$. Er ist das Produkt aus dem linearen Stoffübergangskoeffizienten β_l an der Phasengrenze zwischen Gas und Flüssigkeit und der auf das Flüssigkeitsvolumen V bezogenen Größe dieser Grenzfläche $\frac{A}{V} = a$. Die Definition dieses wichtigen Charakteristikums mehrphasiger Reaktoren ergibt sich aus der folgenden einfachen Überlegung:

An einer Grenzfläche zwischen fluiden Phasen existieren grundsätzlich *Grenzschichten*; jede solche Grenzschicht stellt einen gewissen Widerstand für den Stoffübergang durch die Phasengrenze dar. Der Stoffübergang durch die Grenzschicht entspricht einem Strom durch einen Widerstand und folgt einer treibenden Kraft, nämlich (wie bei allen Diffusionsvorgängen) einem Konzentrationsgefälle. Die begrenzenden Konzentrationen sind...

- unmittelbar an der Phasengrenze die Sättigungskonzentration, mit der sich die betrachtete Gaskomponente (z.B. Sauerstoff, O₂) in der Flüssigkeit löst [199]:

$$c_{l,O_2}^* = \frac{p}{K_{He}} \cdot \varrho_l \cdot \frac{\widetilde{M}_{O_2}}{\widetilde{M}_{H_2O}} \cdot y_{g,O_2} \quad (2.3 - 10)$$

- auf der Seite der freien Flüssigkeit (die als homogen durchmischt angenommen wird) die darin herrschende Konzentration c_l , die sich im Wechselspiel von Stoffaustausch, -transport und (konzentrationsabhängigem) Verbrauch einstellt.

⁷Wegen der unveränderten Geometrie in diesem Zusammenhang sind die Strömungsgeschwindigkeiten der Flüssigkeit im Reaktor *linear* von der Förderleistung des Rührers abhängig.

Für den Stoffstrom durch die Phasengrenzfläche der Größe A ergibt sich:

$$\dot{m} = \frac{dm}{dt} = \beta_l \cdot A \cdot (c_l^* - c_l) \quad (2.3 - 11)$$

Bezieht man die Phasengrenzfläche auf das Volumen ($\frac{A}{V} = a$), so ergibt sich die Definitionsgleichung für den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_l a$:

$$\frac{\dot{m}}{V} = \frac{dc_l}{dt} = \text{OTR} = \beta_l a \cdot (c_l^* - c_l) \quad (2.3 - 12)$$

Der Wert $\beta_l a$ ist der Proportionalitätsfaktor zwischen der volumetrischen Sauerstoffübertragungsrate (OTR, *oxygen transfer rate*) und dem treibenden Konzentrationsunterschied.

Im folgenden werden die einzelnen Faktoren a und β_l näher untersucht.

2.3.1 Phasengrenzfläche a

Der Zweck der Gasdispargierung im Rührreaktor ist es, eine möglichst große submerse Phasengrenzfläche A zwischen Flüssigkeit und Gasblasen zu erzeugen. Deren volumenbezogene Größe a ergibt sich aus dem (relativen) Gasvolumenanteil ε_g und dem Sauterdurchmesser d_{32} (vgl. Gleichung 2.2 - 6, auf Seite 18):

$$\frac{A}{V} = a = \frac{6 \cdot \varepsilon_g}{d_{32}} \quad (2.3 - 13)$$

Der Gasvolumenanteil ε_g hängt davon ab, wie lange die einzelnen Blasen im Flüssigkeitsvolumen festgehalten werden; er ergibt sich aus der mittleren Gasblasenverweilzeit $\bar{\tau}_g$, dem Gasvolumenstrom \dot{V}_g und dem Reaktionsvolumen V [301]:

$$\varepsilon_g = \frac{V_g}{V} = \frac{\dot{V}_g \cdot \bar{\tau}_g}{V} \quad (2.3 - 14)$$

2.3.1.1 Blasenverweilzeit

Die Blasenverweilzeit hängt von der relativen Aufstiegsgeschwindigkeit der Blasen und von der Zirkulation der Flüssigkeit ab. Die Aufstiegsgeschwindigkeit wird wiederum vom Blasendurchmesser (und der Viskosität der Flüssigkeit) bestimmt. Für kleine, sphärische Blasen, die eine immobile Oberfläche wie Feststoffpartikeln haben, gilt bis über einen Durchmesser von 0,5 mm hinaus das STOKESSche Gesetz [148, 147]:

$$F_A = V_{\text{Bl}} \cdot \Delta \varrho \cdot g \quad (2.3 - 15)$$

$$F_w = 6 \cdot \pi \cdot \mu \cdot r \cdot \Delta v \quad (2.3 - 16)$$

$$\Delta v = \frac{V_{\text{Bl}} \cdot \Delta \varrho \cdot g}{6 \cdot \pi \cdot \mu \cdot r} \quad (2.3 - 17)$$

Dieses Gesetz für den Blasenauftstieg gilt näherungsweise auch dann, wenn die Flüssigkeit eine turbulente Strömung ausführt; nur wenn die Blase so groß wird, daß ihr Aufsteigen selbst Turbulenz erzeugt, weicht ihr Verhalten erheblich vom STOKESSchen Gesetz ab. Dies gilt für Blasen weit über 0,5 mm Durchmesser [52].

2.3.1.2 Verweilzeitverteilung

Im Reaktor herrscht eine Zirkulationsströmung, der die Blasen in Abhängigkeit von ihrer relativen Aufstiegs geschwindigkeit mehr oder weniger folgen. Dadurch ist die Verweilzeit der Blasen im Flüssigkeitsraum eine breit verteilte Größe. Ihre Messung ist wegen des gleichzeitigen Stoffübergangs nicht trivial. Näherungen sind aber möglich, so daß auch einige Meßdaten existieren [302, 301].

In [60] und [277] finden sich Literaturübersichten mit Korrelationen zur Bestimmung des (volumetrischen) Stoffübergangskoeffizienten $\beta_l a$ und des (relativen) Gasvolumenanteils ε_g . Nach diesen Sammlungen ist der Gasvolumenanteil ε_g nicht linear proportional zum Gasvolumenstrom \dot{V}_g , sondern es gilt:

$$\varepsilon_g \sim \dot{V}_g^{b_{\dot{V}_g}} \quad b_{\dot{V}_g} \in [0,5; 0,7] \quad (2.3 - 18)$$

Dies zeigt, daß die mittlere Gas- (-blasen-) -verweilzeit $\bar{\tau}_g$ im Reaktor keine Konstante ist, sondern vom Gasvolumenstrom \dot{V}_g (bei sonst konstanten Bedingungen) beeinflußt wird. Starke Begasung setzt das Vermögen des Rührers herab, die Gasblasen in kleinste Fragmente zu zerteilen, so daß zunehmend größere Blasen von den Gaskavitäten hinter den Rührerblättern abgeschnürt werden.

Bei sehr kleinen Begasungsraten, bei denen sich noch keine Gaskavitäten hinter den Rührerblättern ausbilden, passieren die Gasblasen einzeln den Rührerbereich und sind jeweils identischen Bedingungen ausgesetzt. In diesem Bereich muß Gleichung 2.3 - 14 ihre Gültigkeit behalten.

2.3.1.3 Korrelationen

Sehr schnelle chemische Reaktionen zur Absorption eines Gases in einer Flüssigkeit machen es möglich, die spezifische Phasengrenzfläche zu messen [178, 282]. Aus Meßdaten etlicher Autoren wurde so die Korrelation $a = 0,21 \cdot \epsilon^{1,0}$ abgeleitet [203] (d.h. die spezifische Phasengrenzfläche ist direkt [linear] proportional zum Leistungseintrag.)

DECKWER (1985) hat Meßdaten vieler Autoren für unterschiedliche Reaktortypen zusammengetragen [71]. Aus den wiedergegebenen Grafiken entnimmt man (für dieselbe Proportionalität zwischen a und ϵ in Rührkesseln) Exponenten von 0,7 (Sulfitoxidationsmethode) bzw. 0,8 (photographische Bestimmung). Aus theoretischen Überlegungen wird schließlich ein Exponent von 0,4 zitiert [83, Nagel *et al.*].

Nimmt man gemäß Gleichungen 2.3 - 13 und 2.3 - 14 an, daß die spezifische Phasengrenzfläche a proportional zum relativen Gasvolumenanteil ε_g und somit zum Gasvolumenstrom \dot{V}_g ist, so lassen sich die zitierten Angaben zu folgender Korrelation zusammenfassen:

$$a \sim \epsilon^{b_\epsilon} \cdot \dot{V}_g^{b_{\dot{V}_g}}; \quad b_\epsilon \in [0,4; 1,0]; \quad b_{\dot{V}_g} \in [0,5; 0,7] \quad (2.3 - 19)$$

Diese Abhängigkeiten werden weiter unten mit den entsprechenden Proportionalität für den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_l a$ verglichen (s. Abschnitt 2.3.3, auf Seite 26).

2.3.2 Stoffübergangskoeffizient β_l

Der „lineare“ Stoffübergangskoeffizient⁸ läßt sich verstehen als das Reziprok des Widerstands, den ein lösliches Gas beim Übergang durch die Phasengrenze zwischen Gasphase und Flüssigkeit zu überwinden hat.

⁸Das Attribut „linear“ dient zur eindeutigen Abgrenzung gegen den *volumetrischen* Stoffübergangskoeffizienten $\beta_l a$. „Linear“ bezieht sich darauf, daß die Einheit von β_l eine Geschwindigkeit impliziert.

2.3.2.1 Filmtheorie

Die einfachste Modellvorstellung hierzu ist die *Filmtheorie* [107]. Sie geht von folgenden Annahmen aus:

- Die Gasphase ist bis direkt an die Phasengrenze frei von Konzentrationsgradienten (ideal durchmischt). Dies impliziert das Fehlen eines gasseitigen Übergangswiderstands.
- Die Flüssigkeit wird aufgeteilt in einen laminaren Grenzfilm an der Phasengrenze und einen gradientenfreien (ideal durchmischten) Rest. Der gesamte Stoffübergangswiderstand liegt also im flüssigkeitsseitigen Grenzfilm, an dessen Seiten die Konzentrationen aus den ideal durchmischten Fluidbereichen (Gas und Flüssigkeit) anliegen.
- Der laminare Grenzfilm liegt stationär an der Phasengrenze, so daß Stoffaustausch durch ihn hindurch nur als molekulare *Diffusion* stattfinden kann. Mit der Filmdicke δ und dem Diffusionskoeffizienten \mathcal{D} ergibt sich somit folgender einfacher Ausdruck für den Stoffaustauschkoeffizienten [311]:

$$\beta_l = \frac{\mathcal{D}}{\delta} \quad (2.3 - 20)$$

Die Dicke δ ist schwer vorauszusagen; Parallelen mit der NERNSTschen oder der PRANDTLschen Grenzschicht liegen nahe, ergeben aber nur grobe Näherungen. Gleichung 2.3 - 20 impliziert eine direkte (linear) Proportionalität zwischen Stoffübergangskoeffizient β_l und Diffusionskoeffizient \mathcal{D} . Dies widerspricht allen bekannten Darstellungen für den Stoffübergangskoeffizienten.

Berücksichtigt man aber, daß auch die Dicke der „Konzentrationsgrenzschicht“ von bestimmten Stoffeigenschaften abhängt, so ergibt die Filmtheorie einen Exponenten von $b_{\mathcal{D}} = \frac{2}{3}$ für die diskutierte Proportionalität [13]:

$$\beta_l \sim \mathcal{D}^{\frac{2}{3}} \quad (2.3 - 21)$$

Dieses Ergebnis entspricht vielen Meßergebnissen und zahlreichen Literaturangaben [131] für den Stoffaustausch an festen Partikeln sowie an *kleinen* Blasen [71].

2.3.2.2 Turbulenztheorien

HIGBIE [125] entwickelte die *Penetrationstheorie*: Die Grundannahme ist, daß kleine Flüssigkeitsvolumenelemente aus der freien Flüssigkeit an die Grenzfläche gelangen, dort eine bestimmte Verweilzeit lang direkten Kontakt mit der Gasphase haben und danach wieder von der Phasengrenze abgezogen werden [311]. Sie wandern dann in tiefere Flüssigkeitsbereiche, wo sie ihre Identität verlieren (Mikrovermischung) oder durch Diffusion ihren Überschuß an gelöster Substanz an die Umgebung abgeben. Während der Kontaktzeit findet am betrachteten kleinen Flüssigkeitsvolumenelement *instationärer* Stoffaustausch nach dem 2. FICKSchen Gesetz statt:

$$\frac{dc}{dt} = \mathcal{D} \cdot \frac{d^2c}{dx^2} \quad (2.3 - 22)$$

DANCKWERTS [66] gab die Annahme auf, daß alle Flüssigkeitselemente dieselbe Verweilzeit an der Phasengrenze haben, und führte mit der Oberflächenenerneuerungstheorie eine Verteilung dieser Verweilzeit ein. Das änderte aber nichts am Prinzip der Theorie.

In der einfachen Form, mit einheitlicher *Expositionszeit* t_e der einzelnen Flüssigkeitselemente an der Phasengrenze, gilt folgende theoretische Beziehung für den linearen Stoffdurchgangskoeffizienten:

$$\beta_l = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \sqrt{\frac{\mathcal{D}}{t_e}} \quad (2.3 - 23)$$

Die hierin enthaltene Proportionalität des Durchgangskoeffizienten β_l mit der Wurzel des Diffusionskoeffizienten \mathcal{D} entspricht sehr gut Meßwerten, die für *fluide* Phasengrenzen gewonnen wurden. Solche findet man bei großen Blasen und ebenen Grenzflächen in hochreinen Flüssigkeiten.

Für eine aufsteigende Blase, die *laminar* von der umgebenden Flüssigkeit umströmt wird, kann man die Expositionszeit mit der Zeit gleichsetzen, die die Blase braucht, um den Weg ihres eigenen Durchmessers zurückzulegen [311]:

$$t_e = \frac{d_{\text{Bl.}}}{\Delta v} \quad (2.3 - 24)$$

Die Anwendung der Penetrationstheorie in Verbindung mit einer anschaulichen Vorstellung von *Turbulenz* wird weiter unten diskutiert (Abschnitt 4.1.3 [S. 59]).

2.3.2.3 Korrelationen

Die beiden vorangegangenen Abschnitte zitieren aus unterschiedlichen Modellvorstellungen und Theorien unterschiedliche Proportionalitäten zwischen β_l und \mathcal{D} . Diese sind beide, für unterschiedliche Stoffaustauschvorgänge, experimentell bestätigt worden sind. Für die Praxis werden daher dimensionslose Korrelationen mit anpaßbaren Parametern aufgestellt, in denen die Exponenten an Meßergebnisse angepaßt werden können. Die GILLILAND–SHERWOOD–Korrelation [108, 287] hat die folgende generelle Form:⁹

$$\text{Sh} \sim \text{Re}^{b_{\text{Re}}} \cdot \text{Sc}^{b_{\text{Sc}}} \quad (2.3 - 25)$$

Der Exponent b_{Sc} an der SCHMIDTZahl ist für fluide Phasengrenzen (ebene, freie Flüssigkeitsoberfläche [240]) $\frac{1}{2}$ und für solide, immobile Phasengrenzen $\frac{1}{3}$. Der Exponent b_{Re} an der REYNOLDSzahl ist abhängig vom Strömungsregime; für laminare Blasenumströmung ist er z.B. $b_{\text{Re}} = \frac{1}{3}$ und für turbulente Blasenumströmung ist er $b_{\text{Re}} = \frac{2}{3}$. (Dies ergibt sich aus Korrelationen in [52] und [61], und es steht im Einklang mit analogen Korrelationen für den Wärmeübergang in [27].)

Für bestimmte, einfache Fälle sind die Exponenten b_{Re} und b_{Sc} an REYNOLDS- und SCHMIDTzahl identisch. In diesem Fall kann das Produkt aus beiden Kennzahlen zur BODENSTEINzahl Bo zusammengefaßt werden:¹⁰

$$\text{Re} \cdot \text{Sc} = \frac{v \cdot l}{\nu} \cdot \frac{\nu}{\mathcal{D}} = \frac{v \cdot l}{\mathcal{D}} = \text{Bo} \quad (2.3 - 26)$$

Die GILLILAND–SHERWOOD–Korrelation vereinfacht sich dann zu folgender Form (hier wurde die Asymptote 2 aufgenommen, vgl. Fußnote 9):

$$\text{Sh} = 2 + B_{\text{Sh}} \cdot \text{Bo}^{b_{\text{Bo}}} \quad (2.3 - 27)$$

Der Exponent b_{Bo} hat für die laminare Umströmung von Feststoffpartikeln den Wert $b_{\text{Bo}} = \frac{1}{3}$; B_{Sh} nimmt hierbei den Wert $B_{\text{Sh}} \approx 1$ an. Bei großen Tropfen oder Blasen, die also eine voll mobile, fluide Phasengrenzfläche haben, gilt, ebenfalls in laminarer Umströmung: $b_{\text{Bo}} = \frac{1}{2}$ und $B_{\text{Sh}} \approx 0,56$ [61].¹¹

⁹Die rechte Seite der Gleichung 2.3 - 25 muß für $\text{Re} \rightarrow 0$ noch den zusätzlichen Term „+ 2“ enthalten; gegen diesen Grenzwert (oder einen anderen, je nach Wahl der charakteristischen Länge l) geht Sh im laminaren Fall.

¹⁰Statt der BODENSTEINzahl wird an dieser Stelle in der Literatur häufig die PÉCLETzahl (Pe) genannt; letztere ist aber in einer strengen Systematik der Kennzahlen für Wärmetransportprobleme reserviert (vgl. Tabelle C.3 in Abschnitt C.3, auf Seite 192). Es läßt sich auch zeigen, daß in den erwähnten Quellen ebenfalls die BODENSTEINzahl, nur unter anderem Namen, verwendet wurde.

¹¹Die zitierte Quelle [61] gibt für die beiden angegebenen Fälle folgende Formen der Gleichung 2.3 - 27 an:

$$\text{Sh} = 1 + \sqrt[3]{(1 + \text{Bo})} \quad (2.3 - 28)$$

Gleichung 2.3 - 27 wurde theoretisch von BOUSSINESQ hergeleitet; die BOUSSINESQsche Gleichung enthält allerdings keinen konstanten Term und als Faktor B_{Sh} den (theoretischen) Wert $B_{Sh} = \sqrt{\frac{4}{\pi}}$ [41].

2.3.3 Messung und Abhängigkeiten

Die Messung verlässlicher und vergleichbarer Werte für den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_l a$ ist ein vieldiskutiertes Thema [178, 250, 263, 277, 282]. Eine kurze Einführung in die Grundprinzipien gibt Anhang E.1 (Seite 203). Weiterhin werden dort auch verschiedene inhärente Fehlerquellen aufgezeigt und kurz diskutiert.

Für den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_l a$, also die Zusammenfassung aus der Phasengrenzfläche a und dem Übergangskoeffizienten β_l , wurden viele Korrelationen aufgestellt. Sie geben Abhängigkeiten von zahlreichen Einflußparametern an. Darunter sind diverse Stoffeigenschaften von Flüssigkeit und Gas (Dichte und Viskosität, Diffusionskoeffizient, Ionenstärke und Grenzflächenspannung); aber auch geometrische Verhältnisse (Rührer- und Behälterdurchmesser, Rührerposition und Flüssigkeitshöhe) sowie Betriebsparameter (Begasungsrate, Drehzahl) gehen ein.

Die beiden letztgenannten Betriebsparameter (Drehzahl n und Begasungsrate \dot{V}_g) sind anerkanntermaßen die wichtigsten Einflußfaktoren, die in keine Korrelation fehlen. Sie sollen daher kurz diskutiert werden.

2.3.3.1 Leistungseintrag

Für die Abhängigkeit des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_l a$ vom (mechanischen) Leistungseintrag $\frac{P}{V}$ gilt folgendes [263]:¹²

$$\beta_l a \sim \left(\frac{P}{V} \right)^{b_\epsilon} \quad b_\epsilon \in [0,4; 1] \quad (2.3 - 30)$$

Die kleinen Exponenten (0,4) wurden dabei für hochreine, koaleszenzfördernde Flüssigkeiten (Wasser) gefunden; höhere Werte (meist um 0,7) wurden in koaleszenzgehemmten Stoffsystemen gemessen.

Direkt vom Leistungseintrag abhängig ist der Stoffaustausch durch die freie Flüssigkeitsoberfläche. Letzterer setzt sich zusammen aus dem eigentlichen Austausch durch die Oberfläche und dem Eintrag von Blasen von der aufgerührten Oberfläche in die Flüssigkeit. Die Anteile beider Phänomene am gesamten Stoffaustausch sind in kleinen Reaktoren erheblich bedeutender als in größeren Reaktoren [134, 205]. Dies erschwert genaue Voraussagen für $\beta_l a$ bei der Maßstabsvergrößerung ausgehend von relativ kleinen Labor- oder Technikumsreaktoren.

2.3.3.2 Begasungsrate

Die andere der beiden wichtigsten Einflußgrößen für den $\beta_l a$ -Wert ist die Begasungsrate, ausgedrückt z.B. als Gasvolumenstrom \dot{V}_g . Bezüglich ihrer sinnvollen Formulierung existieren widersprüchliche Angaben in der Literatur: Teilweise wird eine gute Korrelation von $\beta_l a$ mit der

$$Sh = 1 + \left(1 + 0,564 \cdot Bo^{\frac{2}{3}} \right)^{\frac{3}{4}} \quad (2.3 - 29)$$

¹²Da bezüglich des Rührvorganges grundsätzlich Stationarität gilt, muß der Leistungseintrag $\frac{P}{V}$ identisch sein mit der volumengemittelten Energiedissipationsrate $\bar{\epsilon}$.

Gasleerrohrgeschwindigkeit w_{g0} gefunden; andere Meßdaten erlauben hingegen nur eine Korrelation mit der volumetrischen Begasungsrate $\frac{\dot{V}_g}{V}$. Dieser Diskrepanz soll im folgenden nachgegangen werden.

Gasleerrohrgeschwindigkeit. Die *Gasleerrohrgeschwindigkeit* ist der Quotient aus dem Gasvolumenstrom \dot{V}_g und der (horizontalen) Querschnittsfläche des Reaktors. Für die Proportionalität des $\beta_l a$ mit der Gasleerrohrgeschwindigkeit ($\beta_l a \sim w_{g0}^b$) wurden Exponenten b im Bereich zwischen 0,3 und 0,5 berichtet. Diese Abhängigkeit läßt sich logisch erklären: Der („lineare“) Stoffdurchgangskoeffizient β_l variiert generell nur wenig (Literaturwerte für wäßrige System liegen zwischen $2 \cdot 10^{-4} \frac{\text{m}}{\text{s}}$ und $5 \cdot 10^{-4} \frac{\text{m}}{\text{s}}$ [52, 149, 193, 215]¹³). Der $\beta_l a$ -Wert variiert also näherungsweise linear mit der spezifischen Austauschfläche a ; diese ist bei konstantem Blasendurchmesser¹⁴ direkt proportional zum relativen Gasvolumenanteil ε_g . Um letzteren bei Maßstabsvergrößerung konstant zu halten, muß der Gasstrom je (horizontaler) Querschnittsfläche konstant gehalten werden.¹⁵ Für den relativen Gasvolumenanteil ε_g wurde schließlich dieselbe Abhängigkeit von w_{g0} gefunden wie für den $\beta_l a$ [325].

HENZLER [121] fand für koaleszenzgehemmte, niedrigviskose Systeme, daß die beiden Exponenten an den Proportionalitäten des $\beta_l a$ mit spezifischem Leistungseintrag und w_{g0} einander zu eins ergänzten:

$$\beta_l a \sim \left(\frac{P}{V}\right)^b \cdot w_{g0}^{1-b} \quad (2.3 - 31)$$

Für koaleszenzgehemmte Stoffsysteme gilt $b \approx 0,7$. Mit dieser Formulierung wurde ein Parameter in aufzustellenden Korrelationen eliminiert.

Volumetrische Begasungsrate. Bei einer Maßstabsvergrößerung wächst die *Höhe* H_R des Bioreaktors. Ungefähr proportional hierzu wächst auch die mittlere Verweilzeit $\bar{\tau}_B$ der Blasen im Reaktor.¹⁶ Je länger eine Blase in der Flüssigkeit verweilt, desto größer ist der Anteil ihres Sauerstoffs, den sie an die Flüssigkeit abgibt. In hohen Reaktoren kann daher eine Verarmung an Sauerstoff in der dispersen Gasphase eintreten [301]. (Vgl. Abschnitt E.1.2, auf Seite 204). In diesem Fall wechselt die limitierende Größe für die Versorgung eines sauerstoffverbrauchenden (Bio-) Prozesses im Reaktor: Es ist nicht mehr die spezifische Phasengrenzfläche a sondern die tatsächliche Sauerstoffzufuhr $\dot{V}_g \cdot y_{g,O_2}$.

In sehr hohen Reaktoren muß also die spezifische (volumenbezogene) Sauerstoffversorgung des (Bio-) Prozesses mit dem Reaktionsvolumen V proportional vergrößert werden [278]. Diese *scale up*-Regel wurde von verschiedenen Autoren experimentell bestätigt [60, 277, 278].

NIENOW (1990) [221] weist darauf hin, daß sich die Begasungskennzahl N_g bei der (geometrisch ähnlichen) Maßstabsvergrößerung ändern kann. Wenn man die volumetrische Begasungsrate $\frac{\dot{V}_g}{V}$ konstant hält, so steigt N_g mit $d^{\frac{2}{3}}$ (konstanter spezifischer Leistungseintrag) oder sogar linear mit

¹³Der generell geringe Einfluß von Turbulenz auf β_l wurde inzwischen auch für Flüssigkeitstropfen in einer Emulsion gezeigt [118]

¹⁴Der Blasendurchmesser ist bei Koaleszenzhemmung nur vom Leistungseintrag abhängig, s. Abschnitte 2.3.3.1 und 4.1.4 (Seite 62). Dies steht auch in Einklang mit Abschnitt 2.3.1.2 (Seite 23): Bei starker Begasung sinkt der Leistungseintrag; dadurch entstehen größere Blasen mit kürzerer Verweilzeit in der Flüssigkeit.

¹⁵Moderne experimentelle Methoden zeigen, daß der relative Gasvolumenanteil im begasten Rührkesselreaktor von Ort zu Ort erheblich variiert [188]. Die angenommene Proportionalität kann also eigentlich nur als erste Näherung angesehen werden.

¹⁶Die Zirkulation der Flüssigkeit und der kleineren Blasen im Reaktor ändert nichts an diesem fundamentalen Zusammenhang.

d (konstante Rührerspitzen Geschwindigkeit). (Vgl. Abschnitt D.3 [S. 199] für den vollständigen Beweis.)

Eine Veränderung der Begasungskennzahl bewirkt häufig eine Veränderung des spezifischen Leistungseintrages (vgl. Abschnitt 2.2.5, auf Seite 20). Generell können Rührer nur bis zu einer gewissen Begasungskennzahl effizient Flüssigkeit pumpen und Gas dispergieren – darüber hinaus setzt die sog. Überflutung ein, und die rührergetriebene Strömung bricht zusammen [122, 224, 221].

2.4 Zusammenfassung

In den ersten drei Abschnitten dieses Kapitels wurden einige Grundlagen der Rührtechnik und besondere Aspekte begaster Rührkessel diskutiert. Abschnitt 2.1 stellt einige grundlegende dimensionslose Kennzahlen zur Charakterisierung von Rührvorgängen vor. Abschnitt 2.2 beschreibt die wesentlichen Vorgänge bei der Begasung und Ausbildung einer dispersen Gasphase; außerdem werden die Auswirkungen der Begasung auf die in Abschnitt 2.1 diskutierten dimensionslosen Größen untersucht.

Abschnitt 2.3 schließlich untersucht die verschiedenen Abhängigkeiten und Einflußgrößen des Stoffaustausches in Rührkesseln, der hierbei als *integrale* Größe betrachtet wird. Die einzelnen Komponenten des volumetrischen Stoffaustauschkoeffizienten $\beta_l a$ wurden beschrieben und Möglichkeiten zur ihrer Modellierung dargestellt. Abschließend werden die beiden weit verbreiteten Strategien zur Wahl der Begasungsrate im Rahmen einer Maßstabsvergrößerung erörtert und verglichen.

Im folgenden sollen einige der bisher veröffentlichten Ansätze zur Modellierung signifikant *inhomogener* Prozesse in Rührreaktoren betrachtet und klassifiziert werden.

Kapitel 3

Literaturübersicht

3.1 Experimentelle Daten

Seit mindestens 35 Jahren werden Inhomogenitäten in Bioprozessen diskutiert: Bereits 1966 fanden STEEL und MAXON Inhomogenitäten, Totzonen und lokalen Sauerstoffmangel bei der Novobiocinproduktion mit *Streptomyces niveus* in einem begasten Pilotreaktor von nur 20 Litern Volumen.

Im folgenden werden weitere experimentelle Ergebnisse zusammengefaßt, die für die Behandlung des Themas dieser Arbeit von Bedeutung sind.

3.1.1 Biologische Testsysteme

Mit verschiedenen biotechnologisch kultivierbaren Organismen können Inhomogenitäten in Bioreaktoren demonstriert und quantifiziert werden.

3.1.1.1 *Bacillus subtilis*

Bezüglich Sauerstoff werden Inhomogenitäten dann als kritisch angesehen, wenn sie zu derartiger lokaler Sauerstoffverarmung führen, daß die Organismen lokal ihren Stoffwechsel umstellen. Zur Detektion solcher Zustände wurde *Bacillus subtilis* als Testsystem charakterisiert [208]. Es wird Glucose als Kohlenstoffquelle (in Komplexmedium) eingesetzt; bei Substratüberschuß werden unterschiedliche Zwischenmetabolite ausgeschieden: Aerob produziert der Organismus Acetoin, bei Sauerstoffkonzentrationen unter 1% Luftsättigung (LS) Butandiol. Der Wechsel zwischen den Stoffwechselwegen kann sich sehr schnell, innerhalb von maximal 0,5 Sekunden, vollziehen [209].

In einem realen Bioprozess entspricht das Produktspektrum einem Volumenintegral über die Sauerstoffversorgung in allen Teilen des Reaktors. Damit wurde das Testsystem auch zur Charakterisierung von Maßstabsvergrößerungen eingesetzt [109]. In einem 14-Liter-Reaktor wurde die Drehzahl geändert und (über die Begasung) die Gelöstsauerstoffkonzentration an einer installierten Meßelektrode konstant gehalten. Dennoch änderte sich das Produktspektrum; damit waren Inhomogenitäten der Sauerstoffversorgung im Reaktor nachgewiesen [208].

3.1.1.2 *Saccharomyces cerevisiae*

Die Bäckerhefe *Saccharomyces cerevisiae* erlaubt die Untersuchung von Inhomogenitäten (Gradienten) hinsichtlich zweier verschiedener Substanzen; dies sind (gelöster) Sauerstoff und die Kohlenstoff- und Energiequelle Glucose [14, 255].

Bei Sauerstoffmangel wechselt die Hefe unverzüglich zur alkoholischen Gärung [101].¹ Als Maß für die *Affinität* des Organismus zu Sauerstoff wird die Konzentration K_M halbmaximaler Aufnahmerate mit 1% LS (Luftsättigung) angegeben [303].² Andere Daten belegen auch erheblich kleinere Werte (ca. 0,1% LS) [101].

Bei einem *Überangebot* an Glucose reagiert Bäckerhefe auch bei guter Sauerstoffversorgung mit sog. *Überschußgärung* (CRABTREE-Effekt). Damit lassen sich lokale Konzentrationsspitzen bei der kontinuierlichen Zufütterung von Glucose nachweisen (*fed batch* oder kontinuierlicher Prozeß). LARSSON *et al.* (1996) haben in einem solchen Prozeß die Glucosekonzentration an verschiedenen Positionen im Reaktor gemessen und erhebliche, von der Position der Zufütterung abhängige Unterschiede gefunden [167].

OOSTERHUIS (1984) machte detaillierte ortsauflösende Messungen der Gelöstsauerstoffkonzentration in einem Produktionsfermenter [229] (vgl. Abschnitt 3.2.2, auf Seite 38).

3.1.1.3 Andere Testsysteme

Escherichia (E.) coli produziert (unter bestimmten Bedingungen) bei Sauerstoffmangel Wasserstoff. Dieser wird *irreversibel* freigesetzt; kleinste Mengen im Abgas aerober (oder mikroaerober) Prozesse weisen auf echte Sauerstoffmangelzonen hin [166].

Die leicht kultivierbare Hefe *Trichosporon cutaneum* wächst obligat aerob; bei Sauerstoffmangel stellt sie *reversibel* ihr Wachstum ein. Der Vergleich einer erreichten Biomassekonzentration mit einem garantiert unlimitierten Laborprozess erlaubt die Charakterisierung der Sauerstoffversorgung in einem gegebenen Reaktor [168].

Penicillium chrysogenum wird durch Sauerstoffmangel *irreversibel* inaktiviert; diese Inaktivierung ist direkt proportional zur Dauer des Sauerstoffmangels. Das System ist aber relativ unempfindlich, nach 10 Minuten Sauerstoffmangel ist die Aktivität um 35% reduziert [164, 165].

3.1.2 Zeitliche Schwankungen

Im realen Bioreaktor bilden sich stationäre Konzentrationsgradienten aus; wenn suspendierte Mikroorganismen (oder Zellen) mit der Flüssigkeit durch den Reaktor zirkulieren, werden sie ständig wechselnden Sauerstoffkonzentrationen ausgesetzt [167]. Viele Autoren haben untersucht, ob und inwieweit diese Tatsache Einfluß auf Wachstums- und Produktionsfähigkeit von verschiedenen Mikroorganismen hat.

Dazu werden die Verhältnisse, denen ein biotechnologischer Nutzorganismus im Großreaktor ausgesetzt ist, in kleinen Laboranlagen nachgestellt. So kann man in kleinen Anlagen bei geringen Kosten das Verhalten des Organismus unter Produktionsbedingungen untersuchen. Für diese als "*scale down*" bezeichnete Methode existieren zwei verschiedene Vorgehensweisen:

- Zum einen verwendet man eine *intermittierende* bzw. eine (zwischen Luft oder Sauerstoff und Stickstoff) *alternierende Begasung* in einem kleinen, gut durchmischten Rührkesselreaktor [230, 300, 303, 317]. Die Luft- oder Sauerstoffbegasung entspricht im Großreaktor der Passage durch den Bereich in unmittelbarer Rührernähe, wo gute Durchmischung, Gasdispersion, Turbulenz und Sauerstoffeintrag herrschen. Die unbegaste bzw. mit Stickstoff begaste Periode entspricht der Zirkulation durch die Peripherie des Großreaktors.

¹Die Enzyme für die Gärung sind *konstitutiv*, d.h. sie werden *immer* exprimiert. Deswegen reagiert der Stoffwechsel auf den Sauerstoffmangel ohne Verzögerung mit Gärung.

²In der zitierten Arbeit wurde der Einfluß periodisch wechselnder Sauerstoffversorgung untersucht; dazu wurde alternierend mit Sauerstoff und Stickstoff begast. Vgl. hierzu auch Abschnitt 3.1.2.

- Zum anderen werden Systeme aus mehreren Reaktoren verwendet, zwischen denen die flüssige Kultur mit Pumpen hin- und hergeführt wird. Die sauerstoffreiche Zone des Großreaktors in unmittelbarer Rührernähe wird hierbei wieder durch einen kleinen, gut durchmischten begasten Rührkessel dargestellt. Für die technische Darstellung der Reaktorperipherie des Großreaktors im *scale-down*-Experiment stehen wiederum zwei Alternativen zur Wahl:
 - Zum einen kann ein unbegaster oder sogar mit Stickstoff kontinuierlich gestrippter Rührkesselreaktor verwendet werden [249]. Nachteilig ist hierbei, daß keine definierte Verweilzeit für den anaeroben Teil des Reaktorsystems gegeben ist [303].
 - Zum anderen kann ein kontinuierlich durchströmter Rohrreaktor verwendet werden. Dessen Analogie zur Zirkulation durch Reaktorbereiche ohne Stoffaustausch wird in Abschnitt 3.2.2 (Seite 38) wieder aufgegriffen.

3.1.2.1 Begasungswechsel

Auf Grund des begrenzten Stoffaustausches in jedem realen (begasten) Rührkessel lassen sich mit intermittierender oder alternierender Begasung keine krassen Konzentrationssprünge realisieren. Nur ein Auf- und Abschwanken der Gelöstsauerstoffkonzentration um einen mittleren Wert ist erreichbar. Fällt die Sauerstoffkonzentration dabei periodisch unter einen kritischen Wert, so zeigen sich nachhaltige Auswirkungen auf Wachstum und Produktion verschiedener Organismen:

Für die Penizillinproduktion durch *Penicillium chrysogenum* wurde eine kritische Sauerstoffkonzentration von ca. 30% Luftsättigung (LS) festgestellt; unter dieser Konzentration fiel die spezifische Produktivität steil ab [317]. Läßt man die Konzentration periodisch zwischen 23% LS und 37% LS schwanken, ist die Produktivität ebenfalls erheblich gemindert. (Die Quelle enthält leider keine Angaben über die verwendeten Zykluszeiten.)

Perioden von 20 Sekunden Stickstoffbegasung, alle ein bis drei Minuten eingesetzt, haben eindeutige Auswirkungen auf die Gluconsäureproduktion durch *Gluconobacter oxydans* [230]. Halbminütiges Wechseln zwischen Luft- und Stickstoffbegasung in einem kleinen (2 bis 5 Liter) Laborreaktor mindert drastisch das Wachstum der Bäckerhefe *Saccharomyces cerevisiae*, die hierbei auch zu erheblichem Anteil alkoholische Gärung ausführt. Auch die Produktion des Antibiotikums Diffizidin durch *Bacillus subtilis* wird gemindert, wenn die Sauerstoffkonzentration durch halbminutenweise Wechselbegasung regelmäßig unter einen kritischen Wert fällt [300].

Die aufgezählten Ergebnisse zeigen, daß aerobe Organismen durch periodisches Abfallen der Sauerstoffkonzentration unter einen kritischen Wert negativ in ihrem Wachstum oder einer besonderen Produktionsleistung beeinflusst werden. In den zitierten Arbeiten wurde die *mittlere* Sauerstoffkonzentration bei den Schwankungen immer in der Nähe einer vorher identifizierten *kritischen* Konzentration gehalten. Daher bleibt hier letztlich unbeantwortet, ob Konzentrationsschwankungen *generell* negative Auswirkungen auf Wachstum und Produktion haben, wie dies in der zuletzt zitierten Arbeit geschlußfolgert wird.

3.1.2.2 Zwei-Reaktor-Systeme

Zwei der oben zitierten Arbeiten enthalten Vergleiche mit Zwei-Kompartiment-Systemen [230, 303]. Beide benutzen als anaeroben Teil einen Rührkessel.

Für die Gluconsäureproduktion mit *Gluc. oxydans* wurde erwartungsgemäß ein totaler Produktionsausfall in der anaeroben Zone beobachtet [230]; darüberhinaus hatte die teilweise Anaerobiose aber keine negativen Einflüsse, die Mikroorganismen wurden also in der anaeroben Zone nicht dauerhaft geschädigt.

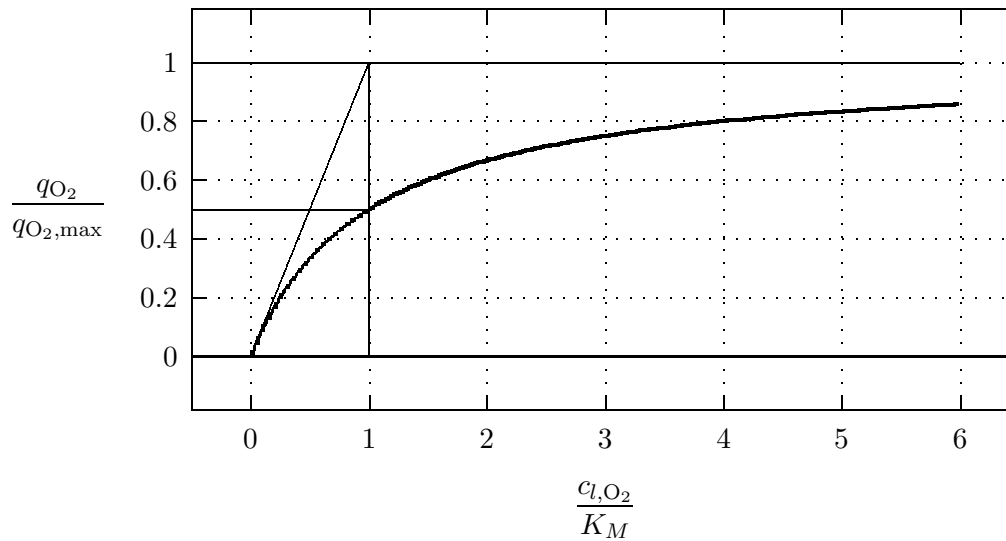


Abbildung 3.1: Ein typischer Graph für die MONOD-Kinetik, die die Abhängigkeit der Sauerstoffaufnahme q_{O_2} von der Sauerstoffkonzentration c_{l,O_2} beschreibt.

AMANULLAH *et al.* (1993) verglichen Zwei-Kompartiment-Systeme mit anaerobem Rührreaktor und solche mit anaerobem Strömungsrohr. Sie fanden erheblich drastischere Auswirkungen der anaeroben Zone im System mit Strömungsrohr. *Vollständige Sauerstoffverarmung* trat darin nach einer Verweilzeit *zwischen ein und sechs Sekunden* ein [6]. Eine Verweilzeit von 30 Sekunden im (anaeroben) Strömungsrohr minderte die Biomasseausbeute bei der Fermentation von *Bacillus subtilis* um 25%.

Ähnliche Untersuchungen wurden mit der Penizillinproduktion durch *Pen. chrysogenum* [165] und mit der Produktion von Malatdehydrogenase durch *E. coli* ausgeführt [231]. Einflüsse in Abhängigkeit von der Verweilzeit im anaeroben Teil wurden gefunden und in einem ausgeformten mathematischen Modell beschrieben [231].

3.1.3 Sauerstoffaffinität

Im vorigen Abschnitt (3.1.2) wurde mehrfach der Begriff der „kritischen Konzentration“ verwendet. Er bezeichnet die Konzentration eines Substrates (hier: gelöster Sauerstoff), bei deren Unterschreiten Veränderungen im Stoffwechsel der betrachteten Organismen eintreten. Diese Veränderungen werden unmittelbar durch ein Absinken der (spezifischen) Sauerstoffaufnahme deutlich. Dieser Wert wird für die Validierung des in dieser Arbeit aufgestellten Modells in einer mikroaeroben Fermentation wichtig werden; deswegen soll er im folgenden ausführlicher diskutiert werden.

Die Abhängigkeit der Sauerstoffaufnahme von der Sauerstoffkonzentration wurde vielfach untersucht; sie wird gewöhnlich nach dem MONODmodell beschrieben. Danach hängt die spezifische Sauerstoffaufnahme q_{O_2} folgendermaßen hyperbolisch von der Gelöstsauerstoffkonzentration c_{l,O_2} ab:

$$q_{O_2} = q_{O_2,\max} \cdot \frac{c_{l,O_2}}{c_{l,O_2} + K_M} \quad (3.1 - 1)$$

Hierin sind $q_{O_2,\max}$ die maximal mögliche spezifische Sauerstoffaufnahme und K_M die MONOD- (oder MICHAELIS-MENTEN-) Konstante. Letztere gibt die (Sauerstoff-) Konzentration an, bei der

die Sauerstoffaufnahme ihren *halb*maximalen Wert erreicht. Abbildung 3.1 zeigt einen typischen Graphen.

Mit der *kritische Sauerstoffkonzentration* ist nun diejenige Konzentration gemeint, unterhalb derer die Sauerstoffaufnahme merklich eingeschränkt ist; oberhalb ist sie näherungsweise gleich der maximal möglichen Aufnahme. Gemäß Abbildung 3.1 ist dieser Wert nicht exakt definierbar, weil volle Sättigung nur bei unendlich hoher Konzentration erreicht wird. Es ist üblich, die kritische Konzentration als das Fünf- bis Zehnfache der MONODkonstante anzusehen.

Konzentrationsmaß. Gelöstsauerstoffkonzentrationen werden in der Praxis häufig in Prozent Luftsättigung angegeben. Diese *relativen Partialdrücke* entsprechen direkt den Ablesewerten einer Sauerstoffelektrode (z.B. nach CLARK), die mit Stickstoff und Luft bei *Atmosphärendruck* auf 0% und 100% kalibriert wurde. In der Literatur findet man daneben auch Konzentrationsangaben als Massen- oder Stoffmengenkonzentrationen.

Relative Partialdrücke lassen sich als Anteil des Absolutdruckes unmittelbar in absolute Partialdrücke (in Pascal) umrechnen; den Zusammenhang zwischen Konzentration und Partialdruck gibt Gleichung 2.3 - 10 auf Seite 21. Die Löslichkeit von Sauerstoff in wässrigen Lösungen und Medien (ausgedrückt durch den HENRY-Koeffizienten, s. Gl. 2.3 - 10 [S. 21]) ist mit Hilfe veröffentlichter Daten und Modelle leicht und genau zu berechnen [146, 284, 285]

Ihrer Anschaulichkeit wegen werden im folgenden weiterhin relative Partialdrücke in % LS (Luftsättigung) verwendet. Auf andere Art angegebene Konzentrationswerte werden umgerechnet.

3.1.3.1 Diffusionseinfluß

Bei der Untersuchung einer kritischen Sauerstoffkonzentration muß eine wichtige Fehlerquelle beachtet werden: Der *diffusive* Stofftransport von der freien Flüssigkeit (in der die Konzentration gemessen wird) bis an die (suspendierten) Zellen des untersuchten Organismus (und in sie hinein) kann eine erhebliche limitierende Wirkung auf die Verbrauchsrate haben [120, 165].

Dies betrifft vor allem die Sauerstoffversorgung all derjenigen Zellen, die Agglomerate bilden. Wegen des kleinen Verhältnisses von Oberfläche und Volumen der (agglomerierten) Biomasse zueinander kommt es hier leicht zu Diffusionslimitierung und echter Sauerstoffverarmung im Inneren der Agglomerate [89]. Bei Stofftransportlimitierung ist die Sauerstoffübertragungsrate (und damit die [apparante] Sauerstoffaufnahme) *linear* abhängig von der Sauerstoffkonzentration in der Flüssigkeit (bzw. eigentlich von der diffusionstreibenden Konzentrationsdifferenz zwischen der freien Flüssigkeit in dem Inneren des Biomasseagglomerates).

Das kinetische Verhalten aller bekannten biochemischen Prozesse und Katalysatoren (Enzyme) legt nahe, daß die intrinsische Abhängigkeit der Sauerstoffaufnahme von der Sauerstoffkonzentration eine MONOD-ähnliche Sättigungskinetik ist (vgl. Abbildung 3.1). Wann immer nicht wirklich diese monoton *gekrümmte* Kinetik gefunden wird, sondern eine *lineare* Abhängigkeit der Aufnahme von der Konzentration, ist eine Stofftransportlimitierung zu vermuten.

Beispiel. MARIC und EINSELE (1981) gingen der Frage nach, ob der *Partialdruck* oder die *Konzentration* des gelösten Sauerstoffs am Organismus die eigentlich bestimmende Größe für die spezifische Aufnahme ist [192]. Sie minderten in einer Fermentation von *Candida tropicalis* durch massive Salzzugabe die Sauerstofflöslichkeit. Ein möglicher Einfluß der hohen Salzkonzentration auf die Hefe wird verneint. Die beobachtete Erhöhung der (Sauerstoffmangel anzeigenden) Ethanolproduktion erklären sie daher mit der verminderten Löslichkeit und damit geringeren *Konzentration* von Sauerstoff bei demselben (geregelten) Anzeigewert der Sauerstoffelektrode.

Die veröffentlichten Meßwerte zeigen erste Anzeichen von Sauerstofflimitierung (Ethanolfreisetzung) schon bei 70% Luftsättigung. Dieser Wert ist gemessen an allen anderen Literaturwerten (s.u.) absolut unrealistisch. Der exakt lineare Kurvenverlauf für die Ethanolbildung in Abhängigkeit von der Sauerstoffkonzentration belegt, daß eine massive Stofftransportlimitierung im untersuchten System vorgelegen haben

muß. Da die Diffusion abhängig von der treibenden *Konzentrationsdifferenz* ist, wurde die beschriebene Auswirkung der Salzzugabe und Minderung der Sauerstofflöslichkeit (und damit maximalen Konzentrationen) gefunden.

3.1.3.2 Messungen und Ergebnisse

Meßmethoden. Die Messung der kritischen Sauerstoffkonzentration oder der Konzentration K_M halbmaximaler Sauerstoffaufnahme ist meßtechnisch anspruchsvoll: Sowohl die Aufnahme als auch extrem niedrige Sauerstoffkonzentrationen sind schwer zu bestimmen. Die Aufnahme läßt sich in einem einfachen Verbrauchsexperiment in eine zeitliche Konzentrationsänderung überführen, womit die Problematik auf eine Größe reduziert ist, die dann aber auch in hinreichender zeitlicher Auflösung zu erfassen ist.

HEINZLE schlägt vor, eine stark verdünnte Bakteriensuspension (mit ausreichend Substratüberschuß) mit Sauerstoff zu sättigen und dann in einer gleichmäßig gerührten p_{O_2} -Meßzelle mit einer kalibrierten CLARK-Elektrode die Sauerstoffkonzentration über der Zeit zu beobachten [119]. Anfangs fällt sie mit konstanter Steigung, was der maximal möglichen Sauerstoffaufnahme $q_{O_2, \max}$ entspricht. Mit Erreichen der kritischen Konzentration setzt eine Verlangsamung des Konzentrationsabfalls ein, und bei $p_{O_2} = K_M$ ist die Steigung nur noch halbmaximal.

Diese zeitabhängige Meßmethode erfordert p_{O_2} -Sonden, die nicht nur bei kleinsten Konzentrationen sehr genau messen, sondern die auch hinreichend *schnell* reagieren [209]. Diese zweite Anforderung kann aber umgangen werden: Man pumpt, analog zu den in Abschnitt 3.1.2.2 (Seite 32) beschriebenen Systemen, die Bakteriensuspension durch eine Bypassleitung (Strömungsrohr) ohne Sauerstoffeintrag.³

An einer bestimmten Stelle im Bypass wird die p_{O_2} -Sonde installiert. Ihr Meßwert ergibt einen Meßpunkt aus der zeitabhängigen Meßkurve an einem bestimmten Zeitpunkt, der der Verweilzeit der Suspension in der Bypassleitung bis zur Meßstelle entspricht. Durch Veränderung der Pumprate kann die Verweilzeit verändert und so in Teilen die beschriebene zeitabhängige Messung nachgeahmt werden, ohne daß eine schnelle Reaktion der p_{O_2} -Sonde erforderlich wäre.

Meßergebnisse. Viele Autoren haben versucht, die kritische Sauerstoffkonzentration (oder die Konzentration halbmaximaler Aufnahme) zu bestimmen. Die angegebenen Literaturwerte variieren teilweise beträchtlich.

Mit der im vorigen Abschnitt (3.1.3.2) beschriebenen, zeitabhängigen Methode wurde *Gluconobacter oxydans* untersucht; es ergab sich für K_M (die Konzentration halbmaximaler Aufnahme) der Wert $K_M = 0,7\%$ Luftsättigung (LS) [180]. Später wurde ein höherer Wert von $K_M = 2,8\%$ LS gefunden, wobei in vielen Meßpunkten eine offensichtliche MONODkinetik bestätigt wurde [228].

Aus einer Graphik mit analogen Meßdaten für *Penicillium chrysogenum* läßt sich ein Wert von drei bis vier Prozent LS für K_M abschätzen [317].⁴ Andernorts wird eine zweiteilige Sauerstoffaufnahmekinetik desselben Organismus berichtet: Zwischen 30% LS und 20% LS fällt die Aufnahme etwa auf die Hälfte; dann bleibt sie bis hinab zu 4% LS konstant [165]. Die Autoren weisen auf den möglicherweise erhebliche Einfluß einer Stofftransportlimitierung (Diffusion) im dichten Myzel hin (vgl. 3.1.3.1, auf Seite 33).⁵

³Bei Silikonschläuchen kann die Sauerstoffdiffusion durch die Wand beträchtlich werden und die Ergebnisse verfälschen.

⁴Bemerkenswert ist hier, daß die Penizillinproduktion bereits bei einem Sauerstoffpartialdruck von 30% LS schlagartig zusammenbricht.

⁵Die Zweiteiligkeit dieser Sauerstoffaufnahmekinetik paßt zu molekularbiologischen Erkenntnissen, die in Abschnitt E.2.1 (Seite 205) dargestellt werden.

Für *Saccharomyces cerevisiae* wurden bereits 1983 umfangreiche Meßdaten bei kleinsten Sauerstoffkonzentrationen gesammelt [101]. Die Daten zeigen eine Abhängigkeit des K_M -Wertes von der (maximalen) Sauerstoffaufnahme [101, Fig. 29]; vermutlich wirkte auch hier eine Stofftransport- (Diffusions-) -limitierung. Die maximale Aufnahmerate wurde durch die Verdünnungsrate im Chemostaten eingestellt; bei der kleinsten Verdünnungsrate lag der K_M -Wert bei 0,1% LS oder darunter.

Schon 1981 wurde die Bedeutung sehr niedriger Sauerstoffkonzentrationen für die Aminosäureproduktion mit *Brevibacterium flavum* diskutiert [128]. In einer (idealisierten) Sauerstoffaufnahmekinetik wird ein kritischer Partialdruck von 0,1% Luftsättigung angesetzt; die Konzentration halbmaximaler Aufnahmerate (K_M) liegt dementsprechend bei höchstens 0,05% LS. — In einem mathematischen Modell für Prozesse in einem (in Abschnitt 3.1.2.2 [S. 32] beschriebenen) *scale-down*-System wird für *E. coli* eine MONODkonstante von $K_M = 1,0\%$ LS angenommen [231].

Für *Hybridomzellen*⁶ wurde experimentell eine Sauerstoffkonzentration für halbmaximale Aufnahmerate von 0,6% LS gefunden [232]. — Mit anderen Säugetierzellen wurde gefunden, daß sie ihren Stoffwechsel unter 0,25% LS *reversibel* auf Anaerobiose (Leben ohne Sauerstoff) umstellen [175]. (Diese Zelllinie zeigte eine Konzentration halbmaximaler Aufnahmerate von ungefähr 1% LS, und erreichte bei etwa 5% LS die Sättigung ihrer Kapazität, kontinuierlich Sauerstoff aufzunehmen.)

Es existiert eine Vielzahl weiterer Literaturwerte, die z.B. in [120] nachzulesen sind. Dort wird auch auf die Auswirkungen von Diffusionsbarrieren in Zellnähe (Schleimkapseln oder dichtes Myzelwachstum) hingewiesen.

3.1.4 Mikroaerobe Prozesse

In den meisten aeroben Bioprozessen hat man bezüglich des Sauerstoffs nur eine Anforderung: Die Konzentration im Reaktor soll nicht unter eine kritische Konzentration sinken, damit der Stoffwechsel des Nutzorganismus nie durch Sauerstofflimitierung beeinflußt wird. Es gibt aber eine wachsende Anzahl spezieller Prozesse, die unter Sauerstofflimitierung der verwendeten Zellen die höchste Wirtschaftlichkeit erreichen [333].

Die räumlichen Konzentrationsschwankungen in gewöhnlichen aeroben Bioprozessen sind größer als die höchsten Konzentrationen in solchen *mikroaeroben* Prozessen. Die inhärenten Inhomogenitäten in großen Reaktoren müssen also hier besonders hinsichtlich möglicher schadhafter Auswirkungen untersucht werden.

Deswegen wird das in dieser Arbeit entwickelte Modell für den Stoffaustausch in begasten Rührkesseln an einem Bioprozeß unter offensichtlicher Sauerstofflimitierung validiert.

3.1.4.1 Butandiol-2,3

Ein sehr gut untersuchter mikroaerober Prozeß ist die Produktion von Butandiol-2,3 durch *Enterobacter aerogenes*. Dies ist eigentlich ein Gärungsprozeß, der rein anaerob durchgeführt werden kann. Es wurde aber gezeigt, daß begrenzte Luftbegasung den Prozeß fördert und die Raum-Zeit-Ausbeute erhöht [332]. Die Sauerstoffkonzentration bleibt hierbei für gewöhnliche CLARK-Sauerstoffelektroden unmeßbar klein (unter 1% Luftsättigung).

Eine optimale Ausbeute erhält man, wenn genau so viel begast wird, daß der Tri-Carbonsäure-Zyklus gerade eben *nicht* in Gang kommt. Aus Bilanzen der verschiedenen Stoffwechselprodukte (Kohlendioxid, Acetoin, Butandiol, Essigsäure und Ethanol) kann errechnet werden, wieviel NADH

⁶„Kreuzung“ aus degenerierten Tumorzellen und differenzierten Zellen des Immunsystems; immortalisierte Zelllinien mit der Fähigkeit zur Produktion monoklonaler Antikörper.

aus dem Tri-Carbonsäure-Zyklus kommt und oxidiert wird [334]. Dessen Anteil am gesamten NADH-Aufkommen und Sauerstoffverbrauch soll möglichst klein bleiben.

3.1.4.2 Durchmischung

Dieses Ziel ist nicht beliebig gut zu erreichen; hierbei spielt insbesondere die Durchmischung nachweislich eine große Rolle [334]: Je höher im Versuchsreaktor die Drehzahl gewählt wurde, desto kürzer war die Mischzeit, und desto höher konnte die mögliche Prozeßausbeute getrieben werden, wobei die anteilige Nutzung des Tri-Carbonsäure-Zyklus immer weiter zurückging.

Mit dem Prozeß wurden auch *scale up*- und *scale down*-Untersuchungen durchgeführt; sie bestätigen das Gesagte [51]. Mit steigender Mischzeit wurde zunehmende Ethanolbildung gefunden, die gewöhnlich ein Hinweis auf vollständige *Anaerobiose* ist. Dieser unerwünschte Nebenweg zu toxischen Nebenprodukten kann im exakt und homogen mikroaeroben Prozeß vollständig unterdrückt werden [335].

3.1.4.3 Andere Prozesse

Auch Prozesse mit höheren Zellen (Säugerzellen) profitieren oft von reduziertem Sauerstoffangebot. Wachstum und Produktivität (Antikörper) zeigen teilweise Maxima weit unterhalb der Luftsättigung [82, 206].

Weiterhin wird die große wirtschaftliche Bedeutung der Produktion von Ethanol („Bioalkohol“) im Zusammenhang mit mikroaeroben Prozesse angeführt [98]. Dieser Prozeß zeigte optimales Verhalten bei Begasung mit stark reduzierter Sauerstoffkonzentration (unter 1% Sauerstoff) [99].

3.1.5 Zusammenfassung

Die in diesem Abschnitt (3.1) zusammengetragenen Quellen ergeben eine wesentliche Erkenntnis: Der Stoffwechsel von aeroben Mikroorganismen in einem Bioreaktor reagiert bei Abfallen der Sauerstoffkonzentration unter einen kritischen Wert *schnell* und derart auf diesen Mangelzustand, daß sich bleibende Auswirkungen auf Wachstum und/oder Produktionsrate ergeben.

Die geringe Löslichkeit von Sauerstoff in wäßrigen Medien führt dazu, daß eine konzentrierte Flüssigkultur in nur wenigen Sekunden den gesamten in ihr (bei Luftsättigung) gelösten Sauerstoff verbraucht. (Vgl. hierzu die hervorgehobenen Worte in Abschnitt 3.1.2.2, auf Seite 32.) Eine intermittierende Sauerstoffversorgung reicht offensichtlich nicht aus, um volle Stoffwechselleistung der Mikroorganismen zu gewährleisten.

Sauerstoffaffinität. Die meisten untersuchten Mikroorganismen und Zellkulturen zeigen hohe *Affinität* bezüglich Sauerstoff, mit Konzentrationen halbmaximaler Aufnahmerate (K_M) zwischen 0,1% und 1,0% Luftsättigung (LS). Die Messung solcher Werte gestaltet sich allerdings schwierig, und der Einfluß jeglicher Stofftransport- (Diffusions-) -limitierung ist nicht immer ohne weiteres zu vermeiden. Dies bedeutet, daß die gefundenen Meßwerte gegenüber dem intrinsischen, wahren Wert noch zu hoch sind.

Einige molekularbiologische Daten und Überlegungen zur Kinetik der Sauerstoffaufnahme durch lebende Zellen werden im *Anhang E.2, auf Seite 205* diskutiert.

Mikroaerobe Prozesse. In Abschnitt 3.1.4 wurden schließlich sogenannte *mikroaerobe* Bioprozesse diskutiert, also solche, in denen lebende Zellen unter Sauerstofflimitierung kultiviert werden.

Es wurde die besondere Bedeutung einer guten Durchmischung zur Vermeidung von anaeroben Bereichen in solchen Prozessen dargelegt. Aus diesem Anlaß wird das in der vorliegenden Arbeit entwickelte Modell zur Vorhersage der Inhomogenitäten bezüglich der Gelöstsauerstoffkonzentration in begasten Rührkesselreaktoren an einem mikroaerob, d.h. unter Sauerstofflimitierung geführten Bioprozeß validiert.

3.2 Strukturierte Modelle

Prozesse in Bioreaktoren sind immer mit Inhomogenitäten, also Gradienten innerhalb des Reaktionsvolumens behaftet [185]. Deren Minimierung ist u.U. sehr aufwendig (extreme Rührleistung). Schon 1977 schlug BRYANT deswegen vor, die Existenz der Gradienten zu akzeptieren [49]. Sofern ihre Auswirkungen quantitativ beschrieben werden können, ist es einfacher, sie einzukalkulieren, als sie vollständig zu vermeiden.

Prozeßmodelle mit konzentrierten Parametern, die eine ideale Durchmischung aller Phasen im Reaktor annehmen, können nicht in der Lage sein, solche gradientenbehafteten Prozesse zuverlässig zu beschreiben [267], da sie die Einflüsse der Inhomogenitäten sowie deren Abhängigkeiten⁷ vernachlässigen.

Viele Autoren bilden Inhomogenitäten im Reaktor in ein Modell ab, indem sie das Reaktionsvolumen in mehrere Kompartimente unterteilen. Diese können dann jeweils nach denselben oder auch nach unterschiedlichen Gleichungen beschrieben werden. Zwischen den Kompartimenten finden Austauschvorgänge innerhalb der einzelnen Phasen statt. Diese sind teils diffusiver Natur (gradientengetrieben), teils konvektiv (abhängig vom Strömungsfeld). Unterschiede zwischen den Modellen existieren vor allem hinsichtlich der Anzahl der Kompartimente.

3.2.1 Vertikale Unterteilung

Die einfachste Strukturierung eines Rührkesselreaktors ist die Gliederung in vertikal übereinanderliegende Kompartimente. Diese Unterteilung bietet sich vor allem bei mehrstufigen Rührsystemen an (mehrere Rührer auf einer Welle): Hier entspricht jeder Rührer (mit dem zugehörigen Zirkulationssystem) einem Kompartiment. MANFREDINI *et al.* (1983) teilten einen schlanken Produktionsreaktor mit vier Rührern in vier „Zellen“ (engl. „unit cells“) ein [80, 187].⁸ Auf gleiche Weise behandelten andere Autoren erfolgreich unterschiedliche Fragestellungen [12, 246].

An jedem radial fördernden Rührer (z.B. 6BSR) bildet sich eine kleeblattförmige Zirkulation aus (vgl. Abschnitt 3.2.3.1 [S. 38] und darin Abbildung 3.2, auf Seite 39). In schlanken Reaktoren mit mehreren Rührern wiederholt sich dieses Muster identisch für jeden Rührer. Dies legt die Kompartimentgrenzen mittig zwischen den Rührern nahe. Außerdem wären zusätzliche Kompartimentgrenzen jeweils in Höhe der Rührerscheibe denkbar. Sie treten aber nicht auf, weil die hohe Turbulenz am Rührer jeweils eine gute Durchmischung der Bereiche über und unter dem Rührer miteinander gewährleistet [5].

Eine weitere Unterteilung wurde von SINGH *et al.* (1987) eingeführt, in der jedes Kompartiment in eine Kette von (Unter-) Kompartimenten zerfällt. Nur die Endglieder der Ketten stehen hierbei untereinander im Austausch [289, 290].⁹

⁷Z.B. ist der Beitrag der freien Flüssigkeitsoberfläche zum gesamten Stoffaustausch in einem begasten Rührkessel stark vom absoluten Maßstab abhängig [134]. Dies muß ein gutes Modell für die Maßstabsvergrößerung solcher Prozesse berücksichtigen.

⁸Auf diese Weise konnte der axiale Gradient der Gelöstsauerstoffkonzentration in einem hohen, begasten Bioreaktor modelliert werden, der auf den *hydrostatischen Druck* im Reaktor zurückging.

⁹Diese weitere Kompartimentierung hat keine reale geometrische Entsprechung. Sie entspricht darin der Idee von

3.2.2 Rührer und Peripherie

Jede Rührerstufe eines Rührreaktors kann in einen kleinen Bereich in unmittelbarer Rührernähe und den (größeren) Rest des Volumens unterteilt werden. Im Rührerkompartiment sind ganz andere Vorgänge relevant als außerhalb: Der Rührer verursacht lokal intensive Turbulenz (und damit gründliche Vermischung) sowie Scherspannungen, die Gas und Tropfen dispergieren. Im übrigen Reaktorvolumen herrschen die ruhige, großräumige Zirkulation und das Abklingen der Turbulenz vor; disperse Phasen bleiben unverändert oder koaleszieren (je nach Stoffsystem und Phasenanteil).

Dementsprechend führt OOSTERHUIS (1984) Rührerkompartimente und „Restkompartimente“ ein. Erstere behandelt er mit Korrelationen für Rührkessel, letztere dagegen wie Blasensäulen [228]. So erhält er mit relativ einfachen Mitteln Voraussagen über Konzentrationsunterschiede für Gelöstsauerstoff in einem großen Produktionsreaktor [229].

BAJPAI und REUSS (1982) entwickelten eine ähnliche Modellvorstellung: Am Rührer herrschen hohe Turbulenz, Energiedissipation und perfekte Durchmischung; außerhalb der Rührernähe zirkulieren diskrete Fluidpakete durch den Reaktor, zwischen denen aber kein Stoffaustausch stattfindet („Segregation“) [14, 15]. Auch der Stoffaustausch bleibt in diesem Modell auf die unmittelbare Rührernähe beschränkt; innerhalb der zirkulierenden Fluidpakete führt die permanente Sauerstoffzehrung durch suspendierte Zellen zunehmend zur Sauerstoffverarmung [255, 258]. Dieses Modell läßt sich durch die Kopplung eines begasten Rührkessels mit einem (unbegasten) Strömungsrohr veranschaulichen, dessen Anfang und Ende an den (ideal durchmischten) begasten Rührkessel angeschlossen sind. Die Verweilzeit im Strömungsrohr entspricht der Lebensdauer der Fluidpakete und der Zirkulationszeit im Reaktor.

KHANG und LEVENSPIEL (1976) gingen von einer ähnlichen Modellvorstellung aus; sie teilten den Zirkulationsweg in eine Kette von Kompartimenten (*Rührerschlaufenmodell*), deren erstes und letztes Glied im Austausch mit dem Rührerkompartiment stehen [152]. BAJPAI und SOHN (1987) erweiterten das Modell auf Reaktoren mit mehreren Rührern [16]. Austausch zwischen den Rührerstufen wurde hierbei durch Stoffströme zwischen den verschiedenen zentralen Rührerkompartimenten implementiert.

3.2.3 Höher auflösende Modelle

Im zuletzt beschriebenen Rührerschlaufenmodell sind jeweils etliche Zonen (Kompartimente) zu einem Ring verschaltet. Der Ring steht gleichzeitig für die Zirkulation über *und* unter dem Rührer; deswegen wurden Austauschströme zwischen verschiedenen Rührerstufen jeweils an die zentralen Rührerkompartimente gebunden, obwohl solche Austauschvorgänge eigentlich weitab vom Rührer, in der Peripherie der einzelnen Rührerstufe, stattfinden.

3.2.3.1 Mehr-Kompartiment-Modelle

RAGOT und REUSS (1990) unterteilen das kleeblattförmige Zirkulationsmuster eines radial fördernden Rührers (vgl. linke Seite von Abbildung 3.2) in bis zu 12 Kompartimente („Zellen“). Dies kann vollkommen analog auf mehrstufige Rührbehälter (mit mehreren Rührern auf einer vertikalen Achse) angewendet werden. Der Austausch zwischen zwei Rührerstufen geschieht dann zwischen der obersten Kompartimentreihe der unteren Rührerstufe und der untersten Kompartimentreihe der oberen Rührerstufe.

SINCLAIR und BROWN (1970), einen kontinuierlichen Reaktor in zwei „Kompartimente“ zu gliedern, von denen eines Zu- und Ablauf besitzt, während das andere nur mit dem ersten im Austausch steht [288].

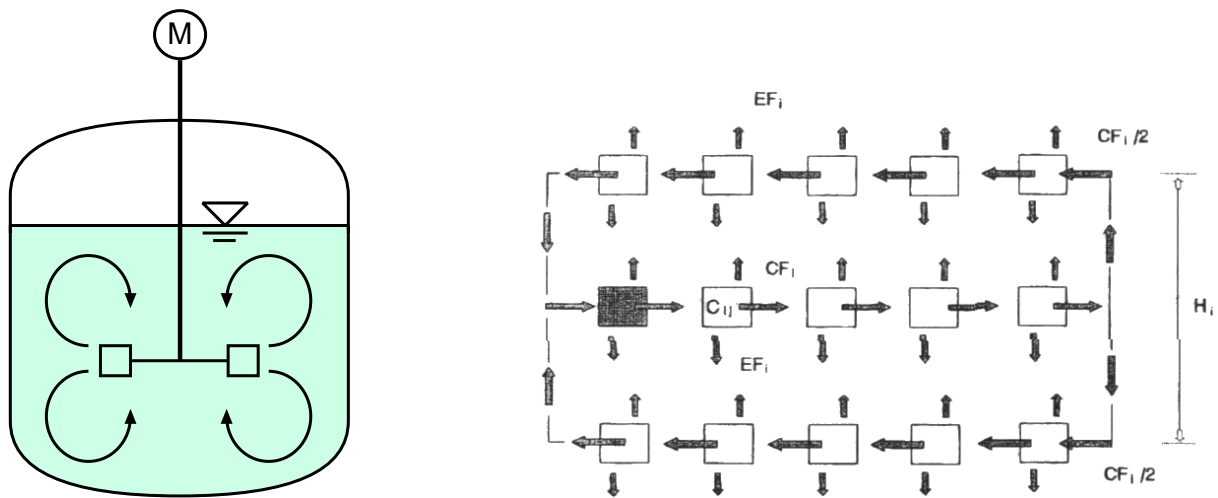


Abbildung 3.2: Links: Kleeblattförmige Zirkulationsstruktur an einem radialfördernden (Scheiben-) Rührer (6BSR); Rechts: Struktur des Modelles von CUI et al. (1996) für eine Rührerstufe [65].

Gleichmaßen gehen CUI *et al.* (1996) vor [65]. Sie beschreiben mit ihrem Modell die Abhängigkeit einer Mischzeitmessung von der Wahl der Positionen für Spurstoffzugabe und kontinuierliche Detektion. Die Modellstruktur ist im rechten Teil von Abbildung 3.2 veranschaulicht.

RAGOT und REUSS (1990, s.o.) bilanzieren in ihrem Modell Flüssigkeit, disperse Gasphase und suspendierten Feststoff in jedem einzelnen Kontrollvolumen. Auch die Kombination mit einem strukturierten *metabolischen* Modell wurde diskutiert [267].

3.2.3.2 Zonen-Netzwerk-Modell

Der vorstehend beschriebene Ansatz wurde inzwischen auf bis zu 30.000 Zellen (Kontrollvolumina = Kompartimente) und mehr ausgedehnt [133, 189]. Zwei- und *dreidimensional* wurden Spurstoffausbreitung und Feststoffsuspension damit behandelt [47, 195].

Die Modellparameter für die Austauschströme zwischen den Kontrollvolumina wurden durch Anpassung von Modellrechnungen an Meßergebnisse ermittelt. (Dazu wurden jeweils bestimmte Gruppen von Zellen zusammengefaßt und mit identischen Parametern belegt.) Dieser Modellansatz wird auch in jüngster Zeit, trotz der vorherrschenden Hinwendung zur numerischen Strömungssimulation (s.u., Abschnitt 3.3), weiter verfolgt [39]. Strömungsdaten werden hierbei auch aus vereinfachenden Ansätzen (Schlaufenströmung mit Rührerpumpleistung) oder semi-empirischen analytischen Korrelation für die ortsabhängigen Geschwindigkeitsfelder bezogen.

3.2.4 Zusammenfassung

Dieser Abschnitt (3.2) klassifiziert verschiedene Modelle mit verteilten Parametern zur Beschreibung inhomogener Rührkessel nach dem Grad ihrer räumlichen Auflösung. Allen Modellen ist gemeinsam, daß sie viele *Parameter* zur Beschreibung der Stoff- und Austauschströme zwischen den einzelnen Kompartimenten enthalten. Diese Parameter können nur aus *Meßwerten* gewonnen werden. Ihre Übertragbarkeit auf andere Apparateformen und *-größen* bleibt dabei fraglich, und damit auch die Verwendbarkeit der Modelle als Vorhersageinstrument für die Maßstabsvergrößerung.

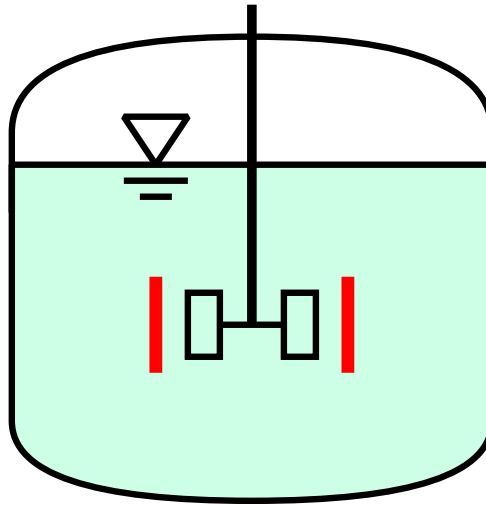


Abbildung 3.3: Eine Schnittebene durch einen Rührreaktor, in der eine zweidimensionale Simulation gerechnet werden kann. Zusätzlich sind am Rührer die Positionen markiert, an denen radiale und tangential Geschwindigkeitskomponenten als Rührer-Ersatz-Modell vorzugeben sind.

3.3 Strömungssimulation

Eine genaue Modellierung und Vorhersage der Austausch- und Transportvorgänge in begasten Rührkesselreaktoren erfordert eine detaillierte, orts aufgelöste Betrachtung. Diese benötigt wiederum genaue Informationen über den *strömungsabhängigen Transport* im Reaktionsraum, also über das dreidimensionale, mehrphasige Fluid-Strömungsfeld.

Diese Information, die bei guter räumlicher Auflösung große Datenmengen erfordert, ist nur unter großem Aufwand meßtechnisch zu gewinnen. Vereinfachte empirische Formulierungen sind für *Voraussagen* nur bedingt brauchbar. Deswegen bietet sich hier die Alternative an, mit numerischer Strömungssimulation detaillierte, quantitative Informationen über das Strömungsbild im Rührreaktor zu ermitteln.

Die Mehrzahl der bisher durchgeführten Arbeiten galt der Simulation *einphasiger* Strömungen in Rührkesseln, also ohne Blasenbegasung oder suspendierte Feststoffe. (Zur Simulation von Mehrphasenströmungen vgl. Abschnitt 3.4.1 [S. 47] und Abschnitt 4.3 [S. 79].)

3.3.1 Zweidimensional

Rührkessel sind in den meisten Fällen axialsymmetrische Behälter, in deren Rotationssymmetrieachse die Rührerwelle liegt. Sofern keine Strömungsbrecher existieren, zeigen Geometrie und (zeitgemitteltes) Strömungsfeld keinerlei Variation in Umfangsrichtung (Winkelkoordinate, auch „azimutale Richtung“ genannt). In diesem Fall kann die Simulation auf ein *zweidimensionales Rechengebiet* beschränkt werden. Es werden aber trotzdem (in hoher räumlicher Auflösung) Geschwindigkeitskomponenten in allen drei Raumrichtungen eines nunmehr zylindrischen Koordinatensystems berechnet.

Abbildung 3.3 zeigt ein solches zweidimensionales Rechengebiet – es entspricht genau einem senkrechten Schnitt mittig durch den Rührbehälter.

(Da die Berechnung auch für die beiden [zueinander spiegelsymmetrischen] Hälften dieser Berechnungsebene identische Ergebnisse haben muß, wird die Berechnung sogar von vornherein auf eine Halbebene

beschränkt werden, die ihre Grenze an der [senkrechten] Symmetrieachse des Rührkessels hat.)

Der Rührer ist normalerweise nicht vollständig axialsymmetrisch – er kann also nicht geometrisch in das zweidimensionale Berechnungsgebiet hinein abgebildet werden. Der Rührer wird daher in einem sog. *Rührer-Ersatz-Modell* als einfaches Pumporgan aufgefaßt; es wird lediglich in seinem Ausströmbereich die Geschwindigkeit und Richtung der von ihm getriebenen Flüssigkeitsströmung festgelegt. Diese Werte müssen hierfür i.d.R. meßtechnisch oder aus detaillierteren Strömungssimulationen bestimmt werden [114].¹⁰

Abbildung 3.3 zeigt, wo im Ausströmgebiet eines radial fördernden Scheibenrührers z.B. radiale und tangentielle Geschwindigkeiten (bzw. axiale *Profile* dieser Geschwindigkeitskomponenten) in das Rechenggebiet einbeschrieben werden können.¹¹ Druck und axiale (senkrechte) Geschwindigkeitskomponente an dieser Stelle sowie die gesamte Strömung im Rest des Reaktors werden dann von der numerischen Strömungssimulation vorausgesagt. — Für einen axial nach unten fördernden Rührer würde man axiale und tangentielle Geschwindigkeitskomponenten auf einer radialen Linie unter dem Rührer (in seinem unmittelbaren Auswurfbereich) festlegen.

Zweidimensionale (und *stationäre*) Berechnungen erfordern im Vergleich mit allen anderen Methoden (s.u.) die geringste Rechenleistung und den wenigsten Arbeitsspeicher. Deswegen standen sie im Anfang der Entwicklung [117, 279, 315]. Auch später wurden sie oft eingesetzt, wenn auf der Grundlage der gewonnenen Strömungsdaten weitere Phänomene modelliert werden sollten [43, 225, 259, 279]. Dies wird in Abschnitt 3.4.2 (Seite 49) beschrieben.

Strömungsbrecher. Reale Reaktoren enthalten häufig Strömungsbrecher, um die Ausbildung einer Trombe zu vermeiden. Ihr Effekt kann in einer zweidimensionalen Simulation als *Impulssenke* nahe der Reaktorwand modelliert werden. Gemäß Gleichung D.1 - 2 (Seite 197) kann eine Widerstandskraft für die Umströmung eines Körpers definiert werden; dieses Gesetz wurde angewendet und ein empirischer Wert für den Widerstandskoeffizienten C_w eingesetzt [117, 191].

3.3.2 Dreidimensional

Die Inhomogenitäten innerhalb gerührter Reaktoren bestehen aber nicht nur in Form von axialen und radialen Gradienten; auch in Umfangsrichtung existieren häufig erhebliche Variationen des Strömungsfeldes und der davon abhängigen Austausch- und Transportvorgänge. (Z.B. bilden sich hinter Strömungsbrechern häufig Rezirkulationszonen mit hoher lokaler Fluidverweilzeit aus; dies wirkt einer schnellen und effizienten Vermischung im Reaktor entgegen.) Die Reduktion der Strömungssimulation *bewehrter* Rührkessel auf zwei Dimensionen ist eine erhebliche Vereinfachung. Sie ergibt daher nur relativ grobe Näherungen im Vergleich mit Meßwerten [22].

Eine genaue Beschreibung der Vorgänge im Rührkessel erfordert also eine orts aufgelöste Betrachtung in allen drei Raumrichtungen. Dies erfordert natürlich wesentlich mehr diskrete Volumenelemente („Zellen“, s. Abschnitt 4.2.5.2, auf Seite 77) und somit größere Rechner. Die Strömungsbrecher können aber nun geometrisch direkt im Rechenggebiet abgebildet werden, so daß auch die Strömungsstrukturen in ihrer Umgebung korrekt vorausgesagt werden können. So wie es technisch möglich war, wurden die Simulationen deswegen auf drei Dimensionen ausgedehnt [201, 293].

Die Auswirkung des Rührers wird weiterhin häufig über ein Rührer-Ersatz-Modell in die Simulation eingepreßt, wie im vorigen Abschnitt (3.3.1) dargestellt. Wegen der hohen Vermischungsintensität am Rührer wurde es für wesentlich wichtiger befunden, räumliche Gradienten an den

¹⁰Weitere Details zu verschiedenen Formen des Rührer-Ersatz-Modells diskutiert Abschnitt 3.3.3, auf Seite 42.

¹¹Dies entspricht genau der Festlegung von *Randbedingungen* an den Rändern des Berechnungsgebietes; dieser Ausdruck erscheint daher häufig als Beschreibung für *Rührer-Ersatz-Modelle*.

Strömungsbrechern korrekt vorherzusagen. Für einen radial fördernden (Scheiben-) Rührer wurden radiale und tangential Geschwindigkeit auf einer den Rührer umgebenden Zylindermantelfläche festgelegt; für einen axial fördernden (z.B. Propeller-) Rührer wurden axiale und tangential Geschwindigkeitskomponente auf einer Kreisscheibe über oder unter dem Rührer (jeweils im Auswurfbereich des Rührers) vorgeschrieben.

3.3.3 Rührer-Ersatz-Modelle

In den vorigen Abschnitten wurde bereits beschrieben, wo welche Geschwindigkeitskomponenten als Rührer-Ersatz-Modell in Simulationen einbeschrieben werden können. Für die Simulation turbulenter Strömungen müssen an dieser Stelle zusätzlich „Randbedingungen“ für die Modellgrößen des Turbulenzmodells (z.B. k und ϵ) vorgegeben werden [331]. Deren Ermittlung aus Meßwerten ist aufwendig (k) bzw. nur über vereinfachende Annahmen möglich (ϵ : über vereinfachte Turbulenzbeschreibung aus k abgeleitet).

Simulationen mit Rührer-Ersatz-Modell sind immer *stationär*. Sämtliche Größen für die Verwendung im Rührer-Ersatz-Modell müssen daher vollständig über die Zeit bzw. in Umfangsrichtung *gemittelt* werden. Das ist, insbesondere bei Turbulenzgrößen, nicht trivial. Hier stellt sich nämlich die Frage, inwieweit das *periodische* Schwanken der Geschwindigkeiten im Takt der passierenden Rührerblätter (sog. *Pseudoturbulenz*) in die Turbulenzrandbedingungen einbezogen werden soll. Dies wird von verschiedenen Autoren unterschiedlich gehandhabt.

Es wurden auch verschiedene Alternativen zu dem Festlegen von Geschwindigkeitskomponenten im Ausströmgebiet des Rührers bearbeitet:

3.3.3.1 Strahlströmungsmodell

KRESTA und WOOD ersetzten die Meßdaten durch ein analytisches Modell für eine tangential und radiale, scheibenförmige *Strahlströmung*. Dieses sagt, mit empirischen Parametern, Profile für die einzelnen Geschwindigkeitskomponenten und die Turbulenzparameter im Ausströmbereich des Rührers voraus [160].¹² Diese können dann in der numerischen Strömungssimulation als Randbedingungen am Rührer vorgegeben werden.

Ein ähnliches Modell wurde von JU *et al.* (1990) [143] beschrieben¹³ und auch in jüngerer Zeit verwendet [138, 139, 140]. Dabei wurde ein modifiziertes Turbulenzmodell von CHEN und KIM verwendet (s. Abschnitt 4.2.4.1, auf Seite 73). Das k, ϵ -Modell war für zu ungenau befunden worden, was aber vor allem an Schwächen des Strahlströmungsmodells bei der Vorhersage der Turbulenzproduktion lag.

3.3.3.2 Impulsformulierung

Ein anderer Weg ist, nicht Geschwindigkeiten vorzuschreiben, sondern die Impulsübertragung vom Rührer auf das gerührte Fluid vorzugeben. Aus einem Widerstandsgesetz für die Umströmung von Körpern ergibt sich, zusammen mit Rührergeometrie, Drehzahl und Stoffparametern, eine Impulsquelle einschließlich Richtung. Diese kann als Rührerersatzmodell eingesetzt werden [68,

¹²Die enthaltenen empirischen Parameter machen auch dieses Verfahren abhängig von Experimenten.

¹³In Rührersatzmodellen empfiehlt sich u.U. die Einbeziehung der Pseudoturbulenz (vgl. Abschnitte 4.1.1.2 [S. 55] und 3.3.3) in die vorgegebenen Rührerrandbedingungen; damit dieser Ansatz optimale Ergebnisse liefern kann, führten JU *et al.* (1990) [143] eine gewisse Anisotropie in das k, ϵ -Modell ein: Sie machten die Dispersionskoeffizienten Γ_Φ (bzw. die turbulenten PRANDTL- und SCHMIDTzahlen ζ_Φ ; s. Abschnitt 4.2.3.1, auf Seite 71) im Ausströmbereich des Rührers abhängig von der Raumrichtung. Dieser Schritt wurde aber von den zitierenden Arbeiten [138, 139, 140] nicht wieder aufgegriffen.

242, 243]. (Vgl. die Beschreibung von Strömungsbrechern als *Impulssenken* in Abschnitt 3.3.1, auf Seite 41.) Dieses Modell wurde von XU und MCGRATH eingesetzt; sie erklären die Herkunft der analytischen Beschreibung aus der Aerodynamik [330].

Eine weitere Literaturübersicht über Strömungssimulationen mit Rührerersatzmodellen geben KRESTA und WOOD (1991) [160].

3.3.3.3 Ergebnisse

Mit Rührer-Ersatz-Modellen wurden, seit der Pionierarbeit von MIDDLETON (1986) [201], bis in jüngste Zeit viele Simulationen erfolgreich durchgeführt [19, 22, 253]. Es wird berichtet, daß, im Vergleich mit Meßwerten, die zeitgemittelten Strömungsgeschwindigkeiten gut vorhergesagt werden; die Turbulenzenergie und -dissipationsrate im freien Flüssigkeitsvolumen (weitab vom Rührer) werden aber meistens zu gering vorausgesagt [67]. (Dies gilt offensichtlich nicht [immer] für axial fördernde Rührer [Propeller] [251].)

Es wurden aber auch Fehler in vorausgesagten Strömungsfeldern gefunden; in [67] und [114] wird von einer Rotation entgegen der Rührerdrehrichtung in großen Teilen des Reaktorinhalts berichtet. Andere Autoren erklären die räumlichen Profile der Energiedissipationsrate für realistisch; sie schlagen aber die Multiplikation der Daten mit einem konstanten Korrekturfaktor vor, um optimalen Nutzen aus der Strömungssimulation ziehen zu können [281].

3.3.3.4 Grenzen des Rührer-Ersatz-Modells

Die Voraussage zu geringer Turbulenzwerte (s. Abschnitt 3.3.3.3) zeigt die klare Limitierung der Rührer-Ersatz-Modelle: Turbulenz entsteht direkt am Rührer, lokal an jedem einzelnen Rührerblatt. Dies kann ein zeitlich und damit in Rotationsrichtung gemitteltes Rührer-Ersatz-Modell nicht enthalten. Selbst wenn die ins Modell eingepprägten Turbulenzwerte noch die periodische Pseudoturbulenz enthalten (vgl. Abschnitt 4.1.1.2 [S. 55]), kann die lokale Persistenz und räumliche Ausbreitung der Turbulenz im Strömungsgebiet nicht korrekt vorausgesagt werden.

Die mangelhaften Ergebnisse werden oftmals auf mangelhafte Turbulenzmodellierung zurückgeführt; es werden neue Turbulenzgrößen¹⁴ oder neue Terme in alten Gleichungen (s. Abschnitt 4.2.4.1, auf Seite 73) eingeführt, um bessere Übereinstimmung der Simulationsergebnisse mit experimentellen Werten zu erreichen. All diese Verbesserungsversuche haben aber wenig Sinn, wenn die Turbulenzerzeugung am Rührer nicht genauer erfaßt wird (vgl. Abschnitt 4.2.4, auf Seite 72).

Weiterhin wurde die *Anisotropie* der Turbulenz angeführt und die Anwendung entsprechender Turbulenzmodelle (s. Abschnitt 4.2.4.2, auf Seite 73) für vorteilhaft befunden [7]. Dies kann aber wenig sinnvoll sein, wenn am Rührer, wo diese Anisotropie am höchsten sein muß (vgl. Abschnitt 4.1.1.1, auf Seite 54), Strömungsdaten eines Ersatzmodells eingesetzt werden, die nur Turbulenzwerte für isotrope Turbulenz (k und ϵ) enthalten.

3.3.4 Direkte Rührersimulation

Die im vorigen Abschnitt diskutierten Rührer-Ersatz-Modelle haben signifikante Mängel, die *genaue* Strömungsbeschreibungen kaum möglich machen. Außerdem erfordern sie generell gewisse empirische Information (Geschwindigkeits- und Turbulenzdaten oder zumindest Modellparameter). Echte *Voraussagen* sind hiermit also nicht machbar.

¹⁴Es wurde z.B. das gewöhnliche k, ϵ -Modell um eine dritte Gleichung, zur Beachtung der Pseudoturbulenz, erweitert [245].

Deswegen ist es erstrebenswert, die vom Rührer getriebene Strömung einzig auf Grund seiner Geometrie und Drehzahl sowie der relevanten Fluideigenschaften vorauszusagen. Dazu muß der Rührer direkt geometrisch im Berechnungsgebiet abgebildet werden.

3.3.4.1 Unbewehrte Kessel

Im einfachen Fall eines unbewehrten Reaktors (ohne Strömungsbrecher) kann solch eine dreidimensionale *direkte Rührersimulation* ohne weiteres ausgeführt werden. Durch Übertragen in ein *rotierendes Bezugssystem* erhält man einen *stationären Zustand* als Gegenstand der Simulation.¹⁵ In diesem rotierenden Bezugssystem müssen lediglich CORIOLIS- und Zentrifukalkräfte sowie die relative Bewegung der (eigentlich feststehenden) Behälterwand berücksichtigt werden [81].

Dies wurde (z.B.) für große Ankerrührer durchgeführt, die zur Durchmischung hochviskoser Flüssigkeiten in unbewehrten Gefäßen eingesetzt werden [2]. Die Bedeutung *dreidimensionaler* Berechnungen wird hier vor allem für die Voraussage des Durchmischungsverhaltens ausdrücklich betont. Eine andere Arbeit benutzt diese Methode, um den Wärmeübergang von einem beheizten Rührer auf eine gerührte Flüssigkeit vorauszusagen [191]. Validierungsexperimente zeigten, trotz eines relativ groben Diskretisationsgitters, eine hohe Qualität der Voraussagen.

3.3.4.2 Innen und Außen

In Rührbehältern mit Strömungsbrechern sind zusätzliche Schritte notwendig, um eine direkte (geometrische) Rührersimulation zu ermöglichen. Der einfachste Weg ist, in einem mit dem Rührer rotierenden Bezugssystem die Schikanen durch ein Schikanen-Ersatz-Modell näherungsweise auszudrücken. Dabei werden ihre Auswirkungen zeitlich und in Umfangsrichtung gemittelt („verschmiert“ [67, 114]; vgl. auch den letzten Absatz in Abschnitt 3.3.1 auf Seite 41).

Solch eine Simulation ermöglicht, das Strömungsfeld in der Nähe des Rührers genau vorauszusagen, und ihr Ergebnis kann die notwendigen Daten für ein Rührer-Ersatz-Modell liefern. Dessen Anwendung ergibt dann ein verbessertes Bild der Strömung an den Strömungsbrechern; die Ergebnisse können dann als verbessertes Schikanen-Ersatz-Modell in eine (erneute) Simulation des Rührers eingebracht werden [116].

Diese abwechselnde Simulation von Rührer und Schikanen heißt *“inner-outer”*-Methode. Sie setzt voraus, daß dort, wo die Ergebnisse eines Rechenschrittes als Randbedingungen in den anderen eingesetzt werden, die Strömung nicht in Umfangsrichtung variiert.¹⁶ Alternativ können die Daten dort, wo sie als Randbedingungen für den jeweils „anderen“ Schritt dienen sollen, in Umfangsrichtung (azimutal) gemittelt werden [46].

3.3.4.3 Pseudostationäre Methode

Eine Abwandlung der *inner-outer*-Methode ist, die Berechnungen in den Teilbereichen simultan zu führen. An einer Grenzfläche zwischen den beiden Bezugssystemen (rotierendes inneres und stationäres äußeres) wird die korrekte Verbindung hergestellt, d.h. die Rotationskomponente wird jeweils addiert oder subtrahiert.

Für eine solche Berechnung werden Rührer und Strömungsbrecher in einem einzigen Rechengitter diskretisiert; die Grenze zwischen rotierendem und fest stehendem Bezugskoordinatensystem wird so gelegt,

¹⁵Die Simulation stationärer Zustände ist, nach Möglichkeit, gegenüber der numerischen Beschreibung *instationärer* Vorgänge zu bevorzugen; letztere erfordert nämlich eine Vielzahl diskreter Zeitschritte, wobei für jeden solchen Schritt fast der gesamte Rechenaufwand einer eigenen numerischen Simulation aufzubringen ist.

¹⁶Dies bedeutet gleichzeitig, daß die Strömung an diesen Rändern auch von der *Zeit* unabhängig konstant ist.

daß alle diskretisierten Einbauten in sie jeweils direkt umgebenden Bezugssystem fest stehen. An der Grenze zwischen den Bezugssystemen nimmt man an, daß die Strömung weder zeitlich noch in Umfangsrichtung entlang der Grenzfläche variiert.

Die möglicherweise erste Simulation dieser Art, durch TAKEDA im Jahre 1993, ist in einem Literaturüberblick in [214] zitiert. Eine eigene Veröffentlichung aus demselben Jahr zitieren LUO *et al.* in einer wiederum vielzitierten Arbeit [182].

Später wurde zunächst eine Untersuchung im laminaren Bereich veröffentlicht [116]. Darin wird betont, daß für diese Methode eine hohe räumliche Auflösung des Diskretisationsgitter notwendig ist, um Übereinstimmung mit Meßwerten zu erreichen.

Wenig später wurde auch eine weitere Simulation turbulenter Strömung beschrieben [252]; die Ergebnisse wurden Meßwerten gegenübergestellt. Die Methode wurde hier auch als „Momentaufnahme“ bezeichnet – im Idealfall entspricht ihr Ergebnis tatsächlich einer Momentaufnahme aus dem realen Rührvorgang bei einer bestimmten Rührerstellung.

3.3.4.4 Umfangsmittelung

An den Blättern eines Scheibenrührers hängen Turbulenzschleppen, die weit über den Außenradius der Blätter hinausragen. Wenn der Rührer groß ist, können die Wirbelschleppen bis an die Strömungsbrecher reichen. In diesem Fall ist die o.g. Voraussetzung für die pseudostationäre Methode nicht mehr erfüllt: An der Grenze zwischen den beiden Bezugssystemen ist die Strömung nicht mehr unabhängig vom Winkel.

In manchen, weniger drastischen Fällen kann diese Tatsache ignoriert werden. Dadurch, daß der Rührer im Modell feststeht, ragen dann Turbulenzwirbel an den Blattspitzen des Rührers lokal in den Raum zwischen den Schikanen, obwohl sie im Realfall durch die Rührerrotation über den gesamten Winkel verteilt werden. Hier kann das Modell verbessert werden, indem man an der Grenzfläche zwischen den beiden Bezugssystemen zusätzlich über den gesamten Raumwinkel in azimuthaler (Umfangs-) Richtung mittelt.¹⁷

3.3.4.5 Instationäre Lösung

Wenn der Rührer bei seiner Rotation sehr nahe an den Strömungsbrechern entlangstreicht, wird eine pseudostationäre Strömungssimulation auch mit der Umfangsmittelung (s. vorigen Abschnitt) unrealistisch. In diesem Fall kann nur noch eine voll instationäre Simulation die Realität beschreiben [304]. Hierbei wird das innere Teilgitter in kleinen Zeitschritten gegenüber dem äußeren verdreht (Methode der *“sliding meshes”*); für jeden einzelnen Zeitschritt wird anschließend jeweils das gesamte Strömungsfeld, ausgehend vom Ergebnis des vorigen Zeitschrittes, neu berechnet.

(Einige Details zur praktischen Ausführung dieser aneinander „abgleitenden Gitter“ [engl.: *“sliding meshes”*] werden im Anhang behandelt; s. Abschnitt E.3.1, auf Seite 207.)

3.3.4.6 Ergebnisse

Die *pseudostationäre Methode* sagt teilweise zu geringe Wert für die entstehende Turbulenz voraus [67, 114]. Die Geschwindigkeitsfelder zeigen gute Übereinstimmung mit Meßdaten [252]; auch hier ist aber die Umkehr der Drehrichtung in Teilen des Strömungsfeldes zu beobachten. Es wurde bereits erwähnt, daß gute Modellvoraussagen ziemlich feine Diskretisationsgitter voraussetzen (s. Abschnitt 3.3.4.3).

¹⁷Diese Methode wird in der vorliegenden Arbeit für (pseudo-) stationäre Stofftransportberechnungen angewendet (vgl. Abschnitt 5.4.4.1, auf Seite 114).

Diesbezüglich weniger anspruchsvoll ist die voll instationäre Methode, die aber wegen der Berechnung vieler Zeitschritte trotzdem ein Vielfaches an Rechenzeit erfordert. Die Voraussagen für das Strömungsfeld sind gewöhnlich besser als mit den anderen Methoden, Turbulenzwerte werden jedoch ebenfalls zu gering berechnet. Die Abweichung von der Realität ist aber geringer als mit der pseudostationären Lösung.

Auch die direkte Rührersimulation zeigt ihre Schwächen am ehesten in der Vorhersage von Turbulenz – laminare Berechnungen sind bereits sehr zufriedenstellend. Insbesondere für die Entwicklung neuer Rührerformen liegt hier großes Potential [18]. Die Abweichungen der Turbulenzgrößen in turbulenten Berechnungen von der Realität treten i.d.R. nur lokal auf und wurden bereits genau untersucht [137].

3.3.4.7 Ausblick

Mit feinen Gittern und konventionellen (k,ϵ -) Turbulenzmodellen können bereits viele Details der Strömung und der Turbulenzbildung am Rührerblatt aufgelöst werden, wie neuere Arbeiten von NG *et al.* [219], TABOR *et al.* [304] sowie DURST, HÖFKEN und SCHÄFER [132, 275] zeigen.

Die Isotropieannahme (vgl. Abschnitt 4.2.2.2, auf Seite 68) und andere Eigenschaften des k,ϵ -Modells beschränken die Genauigkeit. Vor allem im Rührerbereich ist die Strömung eindeutig anisotrop [171]¹⁸; hier ist die Verwendung spezieller Turbulenzmodelle von Vorteil (s. Abschnitt 4.2.4.2, auf Seite 73).

Weitere Fortschritte sind mit mehr Rechenleistung, feineren Gittern und direkter Turbulenzsimulation (Abschnitt 4.2.4.3, auf Seite 74) zu erwarten.

3.3.5 Zusammenfassung

Dieser Abschnitt (3.3) klassifiziert verschiedene Methoden zur numerischer Simulation der einphasigen (Flüssigkeits-) Strömung in gerührten Behältern. Ausgehend von der Axialsymmetrie unbewehrter Behälter werden vereinfachende, zweidimensionale Darstellungen eingeführt. Die hier benötigten *Rührer-Ersatz-Modelle* werden auch in dreidimensionalen Simulationen häufig eingesetzt, da Inhomogenitäten auf Grund von Rezirkulationszonen und Totwassergebieten vor allem an den Strömungsbrechern Bedeutung haben. Genaue *Vorhersagen* der Strömung im Rührkessel lassen sich aber nur mit der direkten, geometrischen Rührersimulation gewinnen, die in gewissen Fällen als pseudostationäre Simulation ausgeführt werden kann, während in anderen Fällen (große Rührer, deren Blätter nahe an den Strömungsbrechern vorbeistreichen) nur rechenaufwendige instationäre Simulationen korrekte Ergebnisse produzieren können.

3.4 Weitergehende Simulation

Im vorigen Abschnitt (3.3, auf Seite 40) wurden Veröffentlichungen zur Simulation *einphasiger* Strömungen in Rührbehältern behandelt. Daneben sind auch bereits Arbeiten zur Simulation der *mehrphasigen* Strömung u.a. in *begasten* Rührkesseln veröffentlicht worden. Diese sollen im folgenden klassifiziert und beschrieben werden. — Außerdem wurden einige Simulationen mittlerweile auch auf die Beschreibung weiterer Austausch- und Transportvorgänge ausgedehnt; auch diese Arbeiten sollen in diesem Abschnitt zitiert werden.

¹⁸Auch andere Arbeiten zeigen vermeintlich die Anisotropie der Turbulenz in Rührernähe [186]; diese Daten enthalten aber ein erhebliches Maß an *Pseudoturbulenz* (s. Abschnitt 4.1.1.2, auf Seite 55) und sind deswegen diesbezüglich nicht verwertbar.

3.4.1 Mehrphasenströmung

3.4.1.1 Schlupfmodelle

Der einfachste Weg, die getrennten Geschwindigkeitsfelder von Flüssigkeit und Gasphase in begasten Rührkesseln zu berechnen, ist die Annahme einer konstanten und einheitlichen Relativgeschwindigkeit zwischen Gas und Flüssigkeit auf Grund des Auftriebes. Es braucht dann nur noch die Flüssigkeitsströmung berechnet zu werden, aus der man durch Überlagerung mit der festgelegten Relativgeschwindigkeit das (mittlere) Geschwindigkeitsfeld für die Gasphase erhält. Stoffeigenschaften (z.B. Dichte, Viskosität) werden, nach den lokalen Phasenvolumenanteilen gewichtet, über die Phasen lokal gemittelt.

Diese Technik wurde vor allem in den ersten, sämtlich zweidimensionalen Simulationen der Zweiphasenströmung in begasten Rührkesseln angewendet. TRÄGÅRDH führte bereits 1988 eine solche Strömungssimulation für beide Phasen durch; darauf aufbauend entwickelte er ein vollständiges, ortsauflösendes Modell für Stofftaustausch, -transport und -verbrauch in einem biotechnologischen Prozeß [225, 315]. Er verwendete ein zweidimensionales Rührer-Ersatz-Modell für die Flüssigkeitsströmung; Schikanen wurden als Impulssenke in Wandnähe eingeführt. Die für die Schlupfgeschwindigkeit bestimmende (mittlere) Blasengröße wurde als *Anpaßparameter* so eingestellt, daß mit einer bekannten Korrelation für die Blasenauftiegs geschwindigkeit [61] im Modell korrekte (Literatur-) Werte für den integralen Gasvolumenanteil vorausgesagt werden.¹⁹

Vereinfachungen. REUSS *et al.* (1994) führten stark vereinfachte Strömungssimulationen durch, um lediglich eine Grundlage zu produzieren, mit der die weitreichende Anwendbarkeit der Strömungsdaten gezeigt werden sollte [259, 279].²⁰ Sie setzten für die Blasen eine konstante relative Aufstiegs geschwindigkeit von $0,2 \frac{m}{s}$ an und erhielten damit verwendbare Daten für den lokalen Gasanteil im Reaktor; diese wurden weiterverwendet, wie in Abschnitt 3.4.2 (Seite 49) beschrieben.

Entkopplung. Bei sehr kleinem Volumenanteil der (dispersen) Gasphase im Reaktor kann deren Einfluß auf die Strömung der kontinuierlichen (flüssigen) Phase vernachlässigt werden. Somit zerlegte eine Arbeitsgruppe die Simulation der Zweiphasenströmung in zwei Teile: Zunächst wurde (mit einem zweidimensionalen Rührer-Ersatz-Modell) die Flüssigkeitsströmung berechnet; anschließend wurde, ohne Rückwirkung auf die errechneten Daten, die Strömung der dispersen Gasphase berechnet [78, 79]. Dabei wurde eine *lokal* einheitliche Blasengröße angenommen (monodisperse Gasphase), wobei aber turbulenzabhängig *Blasenkoaleszenz* und *-desintegration* formuliert und eingerechnet wurden.

Lokale Blasengröße. Auch BAKKER *et al.* (1994) gründeten ihr Vorgehen auf die Annahme, daß die disperse Gasphase nur eine leicht beschreibbare Rückwirkung auf die Flüssigkeit hat [21]: Zuerst wurde (mit dem kommerziellen Softwarepaket FLUENT) die Flüssigkeitsströmung berechnet [22]. Weiterhin wurde gezeigt, daß die Geschwindigkeiten der Flüssigkeit im begasten Reaktor linear mit dem Leistungseintrag abfallen [20] (vgl. Abschnitt 2.2.6, auf Seite 20). Dementsprechend wurden alle (in FLUENT berechneten) Geschwindigkeiten um den Faktor gemindert, um den die Begasung den gemessenen Leistungseintrag im Experiment reduzierte. (In gleicher Weise wurden auch die

¹⁹Solch eine Methode schränkt generell den *prädiktiven* Charakter eines Modells ein; DECKWER (1988) diskutierte und rechtfertigte prinzipiell diesen allgemein üblichen Weg [70].

²⁰In der Berechnung der Flüssigkeitsströmung ersetzten sie beispielsweise die Verwendung eines Turbulenzmodells durch die Annahme einer *ortsunabhängig* konstanten Wirbelviskosität μ_t .

berechneten Felder für die Turbulenzparameter mit dem integral bestimmten Korrekturfaktor angepaßt.)

Im so „kalibrierten“ Strömungsfeld wurde dann die Strömung der (dispersen) Gasphase berechnet. Dabei wurde auch hier eine *lokal* einheitliche Blasengröße angenommen, die von turbulenzabhängiger *Koaleszenz* und *Blasenzerteilung* abhing. Dafür wurde neben dem relativen Gasvolumenanteil die *Blasenanzahldichte* als zusätzliche, räumlich verteilte Bilanzgröße eingeführt [21]. Die turbulenzbedingte Dispersion („Diffusion“) der Blasen in der Flüssigkeit wurde analog zur kinetischen Gastheorie unter Verwendung einer mittleren freien Weglänge beschrieben. Das Modell wurde auch für gerührte Feststoffsuspensionen validiert [17].

3.4.1.2 Euler/Euler-Modell

GOSMAN *et al.* veröffentlichten bereits 1992 die Verwendung eines echten EULER/EULER-Modells in einer, zudem *dreidimensionalen*, Mehrphasen-Strömungs-Simulation [106]. Die disperse Phase wurde als monodispers angenommen; es wird aber betont, daß das Modell prinzipiell auf beliebig viele Phasen bzw. Größenklassen einer Phase ausgedehnt werden könne. Das Turbulenzmodell wurde näherungsweise auf zwei Phasen erweitert. Die Wirkung des Sechs-Blatt-Scheiben-Rührers wurde auch in dieser dreidimensionalen Simulation durch ein Rührer-Ersatz-Modell angenähert.

Turbulenzmodellierung. Ein echtes EULER/EULER-Modell, mit getrennten Impulsgleichungen für beide Phasen, wurde auch 1996 von MORUD *et al.* in einer zweidimensionalen Simulation verwendet [214]. Rührer und Schikanen wurden durch Ersatzmodelle angenähert. Das (k, ϵ) -Turbulenzmodell wurde nur auf die kontinuierliche Flüssigkeitsphase angewendet, wobei aber zusätzliche Terme für die kinetische Energie ungeordneter Blasenbewegungen einbezogen wurden.²¹ Die Impulsübertragung von den Blasen auf die Flüssigkeit wurde eingerechnet.²² Die Ergebnisse wurden eigenen Messungen in einem koaleszenzgehemmten Stoffsystem gegenübergestellt.

Skaliertes REM. Ein ähnliches Verfahren wurde auch von JENNE *et al.* beschrieben [139, 140]. Sie verwendeten ein Strahlströmungsmodell für den Rührer (vgl. Abschnitt 3.3.3.1, auf Seite 42). Nach einer zitierten experimentellen Untersuchung [20] fallen im begasten Rührkessel die Geschwindigkeitskomponenten am Rührer linear mit dem Leistungseintrag. Dies wurde entsprechend auf die (vom Strahlströmungsmodell abgeleiteten) Geschwindigkeiten am Rührer angewendet, die als Randbedingungen in die Mehrphasenströmungssimulation eingingen. Es wurde ein modifiziertes Turbulenzmodell von CHEN und KIM verwendet (s.a. Abschnitt 4.2.4.1, auf Seite 73), dessen Anwendung auf die kontinuierliche Phase beschränkt blieb. Zur Validierung wurde der vorausgesagte *integrale* Gasgehalt mit Literaturwerten verglichen.

3.4.1.3 Euler/Lagrange-Modell

Sehr wenige Arbeiten zeigen die Anwendung des EULER/LAGRANGE-Modells auf begaste Rührkessel. Die EULER/LAGRANGE-Methode zerlegt die Mehrphasenströmung in eine Kontinuumsströmung und diskrete Partikelbahnen für die disperse Phase (s. Abschnitt 4.3.3 auf Seite 81). In einer zweidimensionalen Simulation wurde 1988 die Scherbelastung von Pflanzenzellen in einem

²¹Die Autoren erwähnen die Mittelung nach LE FAVRE; in [106] (vgl. Abschnitt 3.4.1.2) wird diese Technik kompressiblen Strömungen zugeordnet und eine analoge Methode für inkompressible Strömung beschrieben und verwendet.

²²Eine zusätzliche Turbulenzerzeugung (in der kontinuierlichen Phase) durch die Umströmung der aufsteigenden Blasen wird nicht berücksichtigt, könnte aber (Zitat) in die Gleichungen integriert werden. Der Anteil dieser Turbulenzproduktion wird aus Zitaten zwischen 2% und 75% angegeben. Der untere Wert erscheint aber angesichts der intensiven Turbulenzerzeugung an einem Rührer wesentlich wahrscheinlicher als der obere.

Rührreaktor untersucht [43]. Es wurden Gasblasentrajektorien für unterschiedliche Blasengrößen berechnet, wobei auch stochastische Turbulenzeinflüsse eingingen. Der Impulsübergang von den Blasen auf die Flüssigkeit wirkte sich im Modell sichtbar auf das Geschwindigkeitsprofil für die kontinuierliche Phase aus.

Dreidimensional. PATTERSON [239] benutzte ein Rührer-Ersatz-Modell für eine dreidimensionale Simulation der Flüssigkeitsströmung in einem Rührkessel mit radial förderndem Scheibenrührer. Im errechneten (dreidimensionalen) Strömungsfeld wurde dann mit der EULER/LAGRANGE-Methode, in Form diskreter Blasenbahnen, das Verhalten der partikulären Gasphase vorausgesagt. Aus den Blasenbahnen wurden lokale Gasvolumenanteile bestimmt, und es wurde von Vorstudien zur Simulation des Stoffübergangs zwischen Blase und Flüssigkeit berichtet [239].

Suspensionen & Vermischung. Häufiger wurde das Modell zur Beschreibung von Feststoffpartikeln (in Gasen oder auch in Flüssigkeiten) verwendet. Es wurde z.B. die Erosion an Rührerblättern durch suspendierten Feststoff untersucht und zu diesem Zweck das Verhalten der Partikeln im (zweidimensionalen) Rührkesselmodell simuliert [322]. Auch eine dreidimensionale Simulation einer (Partikel-) Suspension in einem Rührkessel wurde veröffentlicht [68]. Der Rührer wurde durch Impulsquellterme angenähert, die über den gesamten Raumwinkel in Umfangs- (Rotations-) Richtung verteilt wurden.

Das EULER/LAGRANGE-Modell wurde auch zur Untersuchung der Vermischung verwendet; in diesem Fall wurden die Bahnen kleiner, wirbelnder Fluidpakete in der großräumigen Strömung betrachtet. Die Wirbel hatten eine turbulenzabhängige, begrenzte Lebensdauer; die Länge der Bahnen bis zu ihrem endgültigen Zerfall beschreibt die Durchmischungsintensität [23].

3.4.2 Verwendung der Strömungsdaten

Die Simulation der Flüssigkeits- und Mehrphasenströmungen in Rührreaktoren ist kein Selbstzweck. Sie dient der Gewinnung bzw. *Vorhersage* von detaillierten Strömungsdaten; diese Daten sollen dann zur Beschreibung, Beurteilung und Optimierung von Rührern und Prozessen verwendet werden. Hierbei werden vielfältige Kriterien betrachtet.

3.4.2.1 Rührerdesign

Für bestimmte Rühraufgaben existieren klar definierte Aufgaben – hohe Energiedissipation (z.B. zur Blasenzerteilung), vollständige Durchströmung des Reaktionsvolumens (zur Feststoffsuspension), Makro- und Mikrovermischung. Im allgemeinen läßt sich die Erfüllung dieser Anforderungen anschaulich aus dem berechneten Strömungsfeld ermitteln [134].

So läßt sich direkt die Leistungsfähigkeit eines neu entwickelten Rührorgans beurteilen, ohne daß Experimente notwendig sind. Auf diesem Wege kann die Strömungssimulation unmittelbar zur Beschleunigung und Optimierung der Rührer- und Rührkesselentwicklung beitragen [111].

Für spezielle reaktionstechnische Probleme ist es u.U. schwierig, von der Anschauung des Strömungsbildes die Leistungsfähigkeit des Rührorgans vorauszusagen. In diesem Fall muß der Prozeß, der die eigentliche Aufgabe des Rührerreaktors ist, im numerischen Strömungsmodell naturgetreu simuliert werden. Die Voraussagen dieses Prozeßmodells ergeben dann das Gütefunktional für das Rührerdesign.

Makrovermischung. Die erste Hauptaufgabe eines jeden Rührers ist die homogene Vermischung des Reaktorinhaltes. Wenn mit der Simulation eines Vermischungsvorganges ein Rührer beurteilt werden soll, entspricht dies der Messung einer Mischzeit im realen System. Die Simulationen sind daher i.d.R. zeitabhängig; ausgehend von einem Zustand totaler Entmischung (Spurstoff

konzentriert an einer Zugabestelle) wird die Verteilung des Spurstoffes im Reaktor über der Zeit simuliert. Da der Spurstoff aber die Fluideigenschaften und das Strömungsfeld nicht verändert, kann das Strömungsfeld für die instationäre Berechnung „eingefroren“ werden [251, 279, 280]. Mit den verschiedenen Definitionen für die Mischzeit (als Gütekriterium für einen Rührreaktor) wird dann, genau wie im Experiment, die Mischzeit bestimmt (vgl. Abschnitt 2.1.3, auf Seite 15).

Mikrovermischung Die lokale und globale Vermischung im Rührkessel kann Einfluß auf bestimmte chemische Reaktionsnetzwerke haben. MIDDLETON *et al.* simulierten 1986 in einer stationären Berechnung (in einem „eingefrorenen“ Strömungsfeld) ein Netzwerk konsekutiv-paralleler chemischer Reaktionen [201]. Einzelne Reaktionsraten hingen dabei, über Modellansätze für die Mikrovermischung, von lokalen Turbulenzcharakteristika der Strömung ab. Ein kontinuierlicher Eduktstrom wurde vom Rührer in der Reaktionsmischung verteilt; die Effizienz dieser Vermischung beeinflusste die sich ergebende Produktverteilung.

Diese Abhängigkeiten wurden durch die Simulation korrekt vorausgesagt, wie entsprechende validierende Experimente zeigten [201]. Es wird in diesem Zusammenhang auch das Versagen herkömmlicher Regeln zur Maßstabsvergrößerung diskutiert. Sie können Prozesse, bei denen *lokale* Vermischungsvorgänge, wie z.B. an der Öffnung einer Eduktzuführung, eine wesentliche Rolle spielen, unmöglich korrekt vorhersagen.

Zehn Jahre danach wurde die gleiche Fragestellung auf andere Art bearbeitet; in LAGRANGEscher Darstellung wurden einzelne Fluidpakete im Reaktionsvolumen verfolgt, und die auf sie einwirkende *Mikrovermischung* wurde modelliert [24].

3.4.2.2 Scherkräfte

Hochwertige biotechnologische Produkte (komplizierte tierische und menschliche Proteine wie z.B. Wachstumsfaktoren und Immunglobuline) können oft nur von höheren Zellen produziert werden. Deren Kultivierung ist u.a. schwierig, weil sie besonders empfindlich gegen mechanische Scherung sind. Es wurde daher mehrfach diskutiert, wie die mechanische Belastung zu quantifizieren ist, der Zellen im Strömungsfeld eines Rührkesselreaktors ausgesetzt sind [235].

Neben dem Aufplatzen von Gasblasen an der freien Oberfläche sind vor allem rührerinduzierte Scherkräfte sowie turbulenzabhängige Einwirkungen auf die Zellen (durch Turbulenzwirbel der gleichen Größenordnung) besonders schädlich für die lebenden Zellen. Beide Belastungen lassen sich mit der Strömungssimulation vorhersagen. BOYSAN *et al.* (1988) [43] zeigten, wie allgemein wandnahe Schergradienten in einem begasten Zellkulturreaktor vorausgesagt werden können.

Aus den Turbulenzparametern (k und ϵ) lassen sich charakteristische Wirbelgrößen und -geschwindigkeiten abschätzen; damit sind wiederum Aussagen über die Belastung der Zellen im turbulenten Strömungsfeld möglich [58, 293].

Die umfassende Literatur zu diesem Thema soll hier nicht wiedergegeben werden, da die Untersuchung solcher Scherbelastungen nicht Gegenstand der vorliegenden Arbeit ist [123, 141].

3.4.2.3 Wärmetransport

In vielen, vor allem großen, Rührreaktoren entsteht so viel Wärme, daß der Wärmeübergang durch die Behälterwand an die Umgebung nicht mehr ausreicht. Ein Teil der Wärme kann ggf. aus chemischen oder biochemischen Prozessen entstammen. Allein der mechanische Leistungseintrag des Rührers führt aber in großen Reaktoren bereits zu einem erheblichen Wärmeproblem. Bei geometrisch ähnlicher Maßstabsvergrößerung wächst die Oberfläche mit der zweiten, das Volumen aber mit der dritten Potenz der linearen Ausdehnung. Deswegen reicht bei kleinen Reaktoren die

Behälterwand für den Wärmeaustausch aus, während bei großen Reaktoren zusätzliche Wärmetauscher (Rohrbündel) im Reaktor installiert werden müssen [134].

Zur Simulation von Wärmetransportvorgängen in Rührbehältern können, ähnlich wie bei der Untersuchung der Vermischung, die Berechnung der eigentlichen Strömung und diejenige des Wärmetransportes voneinander entkoppelt werden: Nach der Strömungsberechnung wird das Strömungsfeld „eingefroren“ und nur noch für die weitergehende Simulation verwendet. Wenn aber die rheologischen Eigenschaften des Fluides von der Temperatur abhängen, müssen Strömung und Wärmetransport simultan berechnet werden, da sie einander beeinflussen.

Anwendung. Zur Durchführung bestimmter Prozesse muß auch in Rührkesseln das Fluid (vorübergehend) beheizt werden. Der effektivste Wärmetauscher, von dem die geringsten Temperaturgradienten ausgehen, ist ein (z.B. induktiv) beheizter Rührer. Hier herrschen die größten Strömungsgeschwindigkeiten entlang der heißen Oberfläche; hohe Turbulenz sorgt zusätzlich für dünne (PRANDTLsche) Grenzschichten und raschen Transport der Wärme vom Rührer in die Flüssigkeit.

Die Verwendung eines beheizten Rührers zur Heizung viskoser Flüssigkeiten wurde in einer numerischen Simulation untersucht. Es zeigten sich gute Übereinstimmungen zwischen den numerischen Vorhersagen und entsprechenden Meßwerten [191].

3.4.2.4 Stoffaustausch

Verschiedene Arbeiten vergangener Jahre hatten zum Ziel, den Stoffaustausch in begasten Rührkesselreaktoren quantitativ vorauszusagen. Hierzu müssen zunächst getrennte Geschwindigkeitsfelder für Gas und Flüssigkeit ermittelt werden, wie oben beschrieben. Lokale Blasengrößen und Gasvolumenanteile werden aus relativ einfachen Annahmen, Meßdaten oder Simulationsergebnissen gewonnen. Mit dem *Stoffaustauschkoeffizienten* β_l kann dann der lokale Stoffübergang zwischen Gas und Flüssigkeit vorausgesagt werden.

Weit verbreitet ist zu dessen Ermittlung die Gleichung für Blasen in turbulenter Strömung von CALDERBANK und MOO-YOUNG (1961) [52] (s. Gl. 4.1 - 30, auf Seite 62). Diese wurde z.B. in [280] verwendet, um die Sauerstoffversorgung des biologischen Testorganismus *Bacillus subtilis* zu simulieren (vgl. Abschnitt 3.1.1.1, auf Seite 29). Statt der ursprünglich in der Gleichung verwendeten *integralen* Werte für Rührerleistungseintrag und Gesamtgasgehalt wurden *lokale* Werte von turbulenter Energiedissipation ϵ und relativem Gasgehalt ε_g eingesetzt. Es ist nicht vor auszusehen, inwieweit die verwendete Gleichung bei dieser Art der Verwendung gültig ist und quantitativ korrekte Ergebnisse erbringen kann.

Derselbe Einwand gilt auch, wenn die Gleichung aus einem Review von KAWASE und MOO-YOUNG (1990) [150], zitiert wird, wie z.B. in [259]. Auch hier müßte wenigstens die Proportionalitätskonstante, wie oben beschrieben, der veränderten Quelle für die unabhängigen Größen (ε_g und ϵ) angepaßt werden.

TRÄGÅRDH (1988) [315] entnimmt aus [227] die Proportionalität $\beta_l = B_{\beta_l} \cdot \epsilon^{0.2}$. Die Proportionalitätskonstante B_{β_l} bestimmt er durch iterative Anpassung der Simulationsergebnisse an integrale Meßwerte für den Stoffaustausch in realen Fermentationen.

DJEBBAR *et al.* verwenden in zwei Arbeiten [78, 79] einen Ansatz für den linearen Stoffaustauschkoeffizienten von LAMONT und SCOTT (1970) [162]. Dieser ist formal die theoretisch hergeleitete Grundlage für die weiter oben zitierten Korrelationen. (Vgl. Abschnitt 4.1.3.2, auf Seite 61.)

3.4.2.5 Stationärer Verbrauch

Die Simulation des Stoffaustausches in begasten Rührkesseln wurde i.d.R. dazu verwendet, *stationäre Konzentrationsprofile* vorauszusagen. Dafür mußte auch der Verbrauch der übertragenen Substanz (Sauerstoff) in der Flüssigkeit beschrieben werden. Für Substrataufnahme und -verbrauch durch Mikroorganismen oder höhere Zellen wurde in den zitierten Arbeiten das MONOD-Modell verwendet; es ist das einfachste mathematische Modell für eine Sättigungskinetik (vgl. Abschnitt 3.1.3, auf Seite 32).

Neben der maximalen Sauerstoffaufnahmerate beschreibt die *Konzentration halbmaximaler Aufnahmerate* die Verbrauchskinetik. Zahlenwerte für diese Größe wurden verschiedenen Literaturquellen entnommen; TRÄGÅRDH (1988) [315] verwendete z.B. Daten aus [9].

3.4.3 Zusammenfassung

Neben vielen einphasigen Strömungssimulationen in Rührreaktoren existieren bereits etliche Arbeiten zur Simulation der dispersen Zweiphasenströmung in *begasten* Rührkesseln. Der Detaillierungsgrad der reinen Strömungssimulation ist bei diesen mehrphasigen Betrachtungen i.d.R. geringer als bei den einphasigen Simulationen. So wird in *allen* gefundenen (und zitierten) Arbeiten die Wirkung des Rührers nur durch ein Rührer-Ersatz-Modell in die Simulation eingebracht – eine direkte geometrischen Abbildung des Rührers im Simulationsgebiet wurde in keinem Fall verwendet.

Mehrphasenmodelle. Zur Modellierung der Mehrphasenströmung wurden vorwiegend Kontinuumsmodelle verwendet – entweder einfache Schlupfmodelle mit einer festgelegten, gerichteten Differenzgeschwindigkeit zwischen Flüssigkeits- und Gasgeschwindigkeitsfeld, oder das aufwendige EULER/EULER-Modell, daß vollständig freie Geschwindigkeitsfelder für beide Phasen ermittelt. Die nach ihren Eigenschaften sehr geeignet erscheinende EULER/LAGRANGE-Methode wurde nur selten eingesetzt.

Stoffaustausch und -transport Ergebnisse numerischer Strömungssimulation in Rührkesseln wurden auch auf verschiedenartige Weise ausgewertet und weiterverwendet. Neben Vermischung und Scherkräften (in einphasigen Strömungen) wurden auch Modelle für den Stoffaustausch in begasten Rührreaktoren, unter Einbeziehung von Stoffdispersion und -verbrauch in der flüssigen Phase (z.B. durch suspendierte lebende Zellen), gefunden.

Auch all diese Arbeiten verwenden – in zwei- oder auch in dreidimensionaler Darstellung – *Rührerersatzmodelle*. In keinem Fall wurde ein Strömungsfeld rein aus Geometrie-, Stoff- und Betriebsparametern vorausgesagt und dann auch zur Grundlage der Stoffaustausch- und -transportsimulation gemacht. Diese Neuerung einzuführen ist das Ziel der vorliegenden Arbeit.

Lokale Multiplizität In einer dispersen Phase können in unmittelbarer Nähe verschiedene Partikeln mit sehr unterschiedlicher Zusammensetzung nebeneinander existieren. So können z.B. zwei Blasen in einem begasten Rührkesselprozeß, trotz unmittelbarer Nähe zueinander, sehr unterschiedliche Sauerstoffgehalte besitzen. Alle Kontinuumsmodelle für die Mehrphasenströmungen können diese Tatsache nicht in sich aufnehmen. Mit der EULER/LAGRANGE-Darstellung mehrphasiger Strömungen ist dies aber keine Schwierigkeit. Auch deswegen wird in dem in der vorliegenden Arbeit entwickelten Modell die EULER/LAGRANGE-Formulierung für mehrphasige Strömungen verwendet werden.

Kapitel 4

Modelltheorie

In der vorliegenden Arbeit wird ein verteiltparametrisches Modell für den Stoffaustausch und -transport in begasten Rührkesseln auf der Grundlage numerischer Strömungssimulation entwickelt. Dieses Modell wird zum ersten Mal eine direkte geometrische Simulation des Rührers mit einer weitergehenden Simulation der Mehrphasenströmung nach der EULER/LAGRANGE-Methode und einem vollständigen Modell für Stoffaustausch, -transport und -verbrauch kombinieren. Die notwendigen theoretischen Grundlagen für das Modell werden in diesem Kapitel erläutert.

4.1 Turbulenz

Turbulenz beeinflusst maßgeblich die *Vermischung* und den *Stoffaustausch* in mehrphasigen Strömungen – so auch in begasten Rührkesseln. Ihre Charakterisierung und *quantitative* Beschreibung ist wichtig für die korrekte Darstellung dieser Transportprozesse. Die bestimmenden Koeffizienten (Diffusionskoeffizient, Stoffaustauschkoeffizient, ...) hängen in voraussagbarer Weise von den quantifizierbaren Turbulenzparametern ab. Diese Abhängigkeiten sollen im folgenden hergeleitet und diskutiert werden.

4.1.1 Das Phänomen

Turbulenz ist das Auftreten unregelmäßiger Schwankungen in der Strömungsgeschwindigkeit einer Strömung. Sie macht sich u.U. durch Geräuschentwicklung bemerkbar (laminare Strömung ist immer lautlos). Sie führt außerdem zur Veränderung von Widerstandsgesetzen in der Strömungslehre; Strömungswiderstände werden größer, als für laminare Strömung vorausberechnet, und verursachen zusätzlichen Energieverbrauch.

Im folgenden wird eine anschauliche Modellvorstellung von Turbulenz entwickelt; an diese wird dann später eine mathematische Beschreibung von Turbulenz angeknüpft.

Turbulenz kann nur dort entstehen, wo Schergefälle auftreten, also z.B. Geschwindigkeitsgradienten zwischen einem strömenden Fluid und einer umgebenden, feststehenden Wand. Ob tatsächlich Turbulenz entsteht, hängt von der Geschwindigkeitsdifferenz Δv zwischen Fluid und Wand sowie der (dynamischen) Viskosität μ des Fluides ab. Diese Größen werden mit einer charakteristischen Länge l und der Dichte ρ des Fluides zur dimensionslosen REYNOLDSzahl zusammengefaßt:

$$\text{Re} = \frac{l \cdot \Delta v \cdot \rho}{\mu} = \frac{l \cdot \Delta v}{\nu} \quad (4.1 - 1)$$

(Der Quotient $\frac{\mu}{\rho} = \nu$ ist die kinematische Viskosität.)

Für jede Geometrie (Rohr, Stufe, Krümmer, ...) gilt eine spezifische *kritische REYNOLDSzahl*; übersteigen die realen Parameter diesen Wert, so entwickelt sich Turbulenz.

Strukturen. Die schnellen Schwankungen der lokalen Geschwindigkeit in einer turbulenten Strömung lassen sich durch statistisch auftretende *Turbulenzwirbel* erklären. Diese entstehen besonders leicht dort, wo sich eine Strömung von einer Wand *ablöst* (Ablösewirbel). Dieser Mechanismus wirkt intensiv an Rührerblättern und ist damit die wesentliche Turbulenzquelle in Rührreaktoren.

Die Entstehung und Form der Wirbel ist, für einen Scheiben-Rührer mit senkrecht stehenden Blättern (z.B. 6BSR), in den Abbildungen 2.2 und 2.3 (Seite 19) veranschaulicht. Die Größe der Wirbel ergibt sich demnach direkt als die Hälfte der Rührerblatthöhe. Auch die Rotationsrichtung der Wirbel wird von dieser Turbulenzerzeugung bestimmt. Die Wirbel lösen sich vom Turbulenzerzeuger (Rührer) ab und bewegen sich mit der globalen Flüssigkeitsströmung von ihm fort. Ihre Größe und Rotations- (Vorzugs-) Richtung bleiben dabei anfänglich erhalten.

4.1.1.1 Wirbelzerfall

Wenn sich die Wirbel vom Turbulenzerzeuger (Rührer) ablösen und in die freie Flüssigkeit wandern, beginnt ihre Wechselwirkung miteinander, mit anderen (älteren) Wirbeln und mit Wänden (Einbauten). Dabei zerfallen sie, wobei die enthaltene *kinetische Energie* zur Bildung kleinerer Wirbel führt. Diese erfahren dasselbe Schicksal, so daß *immer kleinere Wirbel* entstehen. (Durch das Aufeinandertreffen großer Wirbel können auch kleine Wirbel *innerhalb* großer Wirbel entstehen [162].)

Die kleineren Wirbel haben keine Vorzugsrichtung mehr; ihre Rotationsrichtungen sind gleichmäßig in alle Raumrichtungen verteilt. Diese Abwesenheit jeder Vorzugsrichtung heißt *Isotropie*. Weitab vom Turbulenzerzeuger ist die Turbulenz so „alt“, daß die *anisotropen* Primärwirbel zerfallen sind; hier muß die Turbulenz isotrop sein.

Beim Zerfall der Wirbel und der Übertragung ihrer kinetischen Energie auf kleinere Wirbel ergibt sich ein Strom von kinetischer Energie durch alle Wirbelgrößenklassen hindurch, bis hinab zu den kleinsten auftretenden Wirbeln. Das Ausmaß dieses Stromes ist abhängig vom Leistungseintrag: Man nimmt an, daß (in voll turbulenter Strömung) die gesamte eingebrachte mechanische Leistung zunächst in Primärwirbel eingeht. Der Leistungsfluß durch die *Wirbelkaskade* muß also global dem Leistungseintrag entsprechen.

Der gesamte Leistungsfluß durch die Größenklassenkaskade mündet schließlich in die Klasse der kleinsten vorkommenden Turbulenzwirbel (s. nä. Abschnitt).

Auslöschung. Für jede *Wirbelklasse* kann eine eigene REYNOLDSzahl Re_λ angegeben werden, die mit dem Durchmesser λ und der Umfangsgeschwindigkeit v_λ der Wirbel gebildet wird:

$$Re_\lambda = \frac{\lambda \cdot v_\lambda}{\nu} \quad (4.1 - 2)$$

Diese REYNOLDSzahl sinkt mit dem Zerfall der großen Wirbel in kleine innerhalb der Wirbelkaskade kontinuierlich. Solange sie groß ist, ist der Einfluß der (molekularen) Viskosität gering; alle Energie geht in kleinere Wirbel über [163]. Wenn Re aber den Wert 1 erreicht, ist der Größenbereich der molekularen Energiedissipation in BROWNSche Molekularbewegung erreicht. Dies ist die kleinste existierende Größenklasse; ihr Zerfall führt zum Übergang der kinetischen Turbulenzenergie in Wärme (Turbulenzauslöschung), also zur abschließenden *Dissipation* aller (vom Rührer) eingebrachten mechanischen Energie in Wärme.

Diese Energiedissipation muß global gleich dem (globalen) Energieeintrag sein, da man annimmt, daß sämtliche kinetische Turbulenzenergie verlustfrei durch die Kaskade der verschiedenen Wirbelgrößenklassen läuft. (Die Auswirkungen viskoser Energiedissipation in den Klassen größerer Turbulenzwirbel werden vernachlässigt.)

Größenspektrum. In einer realen turbulenten Strömung koexistieren alle verschiedenen Wirbelgrößenklassen miteinander in demselben Strömungsfeld; es ergibt sich ein kontinuierliches *Spektrum* von Wirbelgrößen. Diese Größen können mit *Wellenlängen* einzelner Schwingungen verglichen werden; jeder Größenklasse kann dann eine *Wellenzahl* w (Kehrwert der Wellenlänge λ , $[w] = 1 \text{ m}^{-1}$) zugeordnet werden. Mit der mittleren Geschwindigkeit v der globalen Strömung ergibt sich auch für jede Wirbelklasse eine eigene *Frequenz* $f = v \cdot w$.

Die Hypothese von TAYLOR („eingefrorene Turbulenz“) nimmt an, daß die gesamte räumliche Struktur der Turbulenz mindestens innerhalb derjenigen Zeit näherungsweise konstant ist, die der größte Primärwirbel braucht, um einen bestimmten Punkt mit der mittleren Geschwindigkeit der globalen Strömung vollständig zu passieren [161]. Somit läßt sich aus dem *Frequenzspektrum* der Geschwindigkeitsschwankungen in einer turbulenten Strömung das *Wellenzahlspektrum* der enthaltenen Turbulenz bestimmen.

4.1.1.2 Messungen

Solche Messungen sind mit Hilfe der Laser-(Phasen-)Doppler-Anemometrie in hoher örtlicher und zeitlicher Auflösung möglich [85, 132, 136, 223, 275, 329]. Es wird hierbei an einer ausgewählten Position (in einem von Lichtstrahlen definierten Meßvolumen von typischerweise $500 \mu\text{l}$) die Geschwindigkeit der Strömung über der Zeit gemessen. Das Spektrum ergibt sich dann aus einer FOURIERanalyse der Meßdaten.

Abschnitt 4.1.2.1 enthält graphische Darstellungen und eine allgemeine Diskussion realer turbulenter Wellenzahlspektren.

Pseudoturbulenz. Es muß beachtet werden, daß bei Messungen im Ausströmgebiet eines Rührers diejenige Frequenz, mit der die einzelnen Rührerblätter das Meßvolumen passieren, sehr stark dominiert. Diese *periodischen* Schwankungen gehören aber nicht zur Turbulenz; in der Literatur existiert deshalb hierfür der Begriff „Pseudoturbulenz“. Behandelt man sie nicht separat, und mißt man in mehreren Raumrichtungen, so wird man immer eine *artifizielle Anisotropie* finden.

Die Pseudoturbulenz muß durch Nachbearbeitung der gewonnenen Frequenz- bzw. Wellenzahlspektren, oder durch Autokorrelation der Geschwindigkeitsdaten, eliminiert werden. Genauer ist es, die zeitabhängigen Meßdaten für die Geschwindigkeit der jeweiligen Winkelstellung des Rührers zuzuordnen und nur alle Meßdaten jeweils einer bestimmten Rührerstellung auszuwerten. Dies ermöglicht eine raumauflösende Messungen bezüglich der Rührerstellung.

4.1.2 Modellierung

Die mathematische Beschreibung des Turbulenzspektrums wurde maßgeblich von KOLMOGOROV in den vierziger Jahren erarbeitet. Seine wesentlichen Hilfsmittel waren hierbei zwei physikalische Größen:

1. Die spezifische (massenbezogene) kinetische Turbulenzenergie k' . Sie hat die Einheit $[k'] = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg}} = 1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^2}$. Allgemein ergibt sich die *volumenbezogene* kinetische Energie eines strömen-

den Fluides (identisch mit dem *Staudruck*) aus seiner Dichte ϱ und seiner Strömungsgeschwindigkeit v :

$$k_v = \frac{\varrho}{2} \cdot v^2 \quad (4.1 - 3)$$

Die *massenbezogene*, spezifische kinetische Energie lautet dann:

$$k = \frac{1}{2} \cdot v^2 \quad (4.1 - 4)$$

In einer turbulenten Strömung ist die zeitabhängige Geschwindigkeit $v(t)$ an einem bestimmten Punkt die Überlagerung aus der mittleren Strömungsgeschwindigkeit \bar{v} und den statistisch über der Zeit verteilten Geschwindigkeitsschwankungen $v'(t)$. Die kinetische Energie der Turbulenzwirbel k' ergibt sich also aus der mittleren Größe $\sqrt{v'^2}$ der Geschwindigkeitsschwankungen:

$$k' = \frac{1}{2} \cdot \overline{v'^2} \quad (4.1 - 5)$$

Der Strich ' am Symbol k wird im folgenden fallengelassen, da von hier ab k nur noch für die spezifische kinetische Energie der *Turbulenz* verwendet werden wird.

2. Die spezifische (massenbezogene) Rate ϵ der *Dissipation* der kinetischen Energie. Sie hat die Einheit $[\epsilon] = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg} \cdot \text{s}} = 1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^3}$. Diese Größe stellt sich lokal in einem Gleichgewicht aus Produktion, Vernichtung, und (vor allem konvektivem) Zu- und Abtransport kinetischer Energie ein.

4.1.2.1 Spektralfunktion

Die kinetische Turbulenzenergie k ist in realer Turbulenz über das Wellenzahlspektrum aller Wirbelgrößen verteilt. Mit Hilfe der in Abschnitt 4.1.1.1 eingeführten Wellenzahl w wird nun folgendermaßen eine Spektralfunktion $E(w)$ definiert:

$$E(w) = \frac{dk}{dw} \quad [E] = 1 \frac{\text{m}^3}{\text{s}^2} \quad (4.1 - 6)$$

Das Integral dieser Funktion zwischen zwei begrenzenden Wellenzahlen ist gleich der (spezifischen) Energie aller Wirbel, die in diesen Wellenzahlbereich (Größenklasse) fallen [235]. Insbesondere gilt also für das *gesamte Spektrum*:

$$\int_0^\infty E(w) dw = k \quad (4.1 - 7)$$

Abbildung 4.1 zeigt eine allgemeingültige Skizze der Spektralfunktion. Oberhalb einer gewissen Wellenzahl herrscht in jeder Größenklasse das Fließgleichgewicht zwischen Energiezufuhr (aus größeren Wirbeln) und -verlusten (an kleinere Wirbel). Man spricht vom *universellen Gleichgewichtsbereich*, in dem das folgende, KOLOMOGOROVsche Gesetz gilt:

$$E(w) \sim \epsilon^{\frac{2}{3}} \cdot w^{-\frac{5}{3}} \quad (4.1 - 8)$$

Diese Proportionalität wurde u.a. von HEISENBERG genau untersucht (zitiert in [324]¹).

Die untere Grenze des universellen Gleichgewichtsbereiches liegt bei derjenigen Wellenzahl w , bei der die Richtungsinformation der Primärwirbel aus der (anisotropen) Turbulenzerzeugung durch Wirbelzerfall (und -neubildung kleinerer Wirbel) verlorengegangen ist.

¹Diese Arbeit diskutiert eine Modifikation des KOLMOGOROVschen Gesetzes für begrenzte Räume, die nicht vollständig von der Turbulenz erfüllt werden können. Sie basiert auf Betrachtungen zur fraktalen Geometrie.

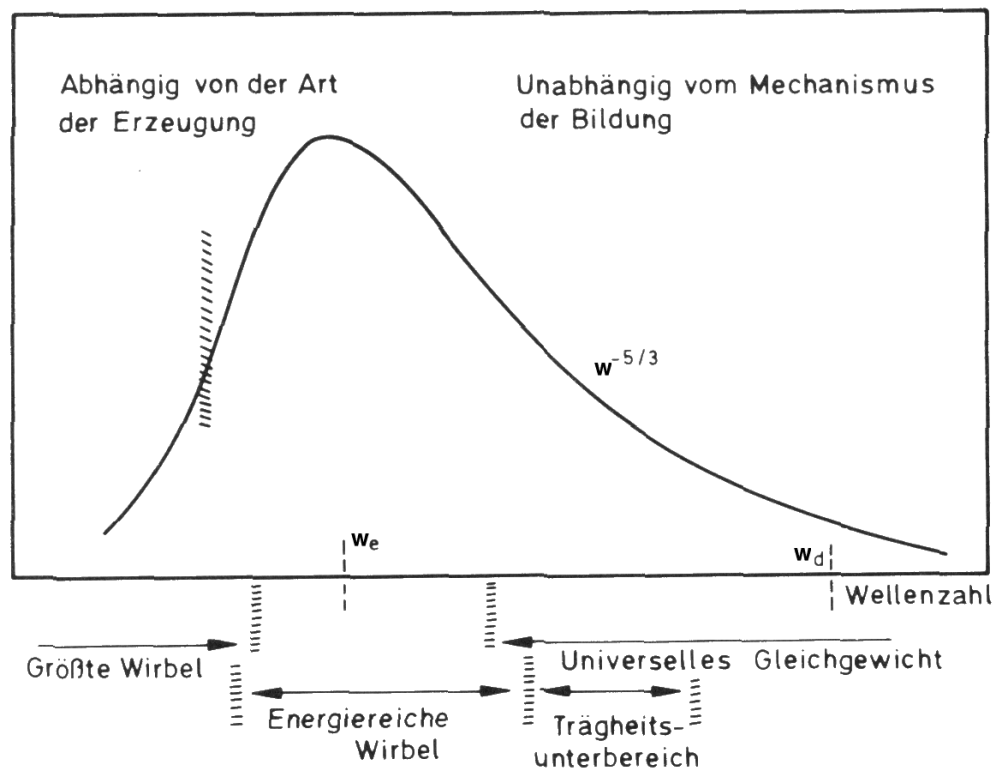


Abbildung 4.1: Eine allgemeingültige Skizze der Spektralfunktion $E(w) = \frac{dk}{dw}$ für die spezifische kinetische Turbulenzenergie k in Abhängigkeit von der Wellenzahl w . Auf der Abszisse ist die Wellenzahl w aufgetragen, auf der Ordinate die Spektralfunktion E . Es sind verschiedene besonders bezeichnete Wellenzahlbereiche sowie die folgenden zwei charakteristischen Wellenzahlen eingezeichnet: w_e , die Wellenzahl der repräsentativen energiereichen Wirbel und w_d , die repräsentative Wellenzahl der kleinen, kinetische Energie viskos in Wärme dissipierenden Wirbel.

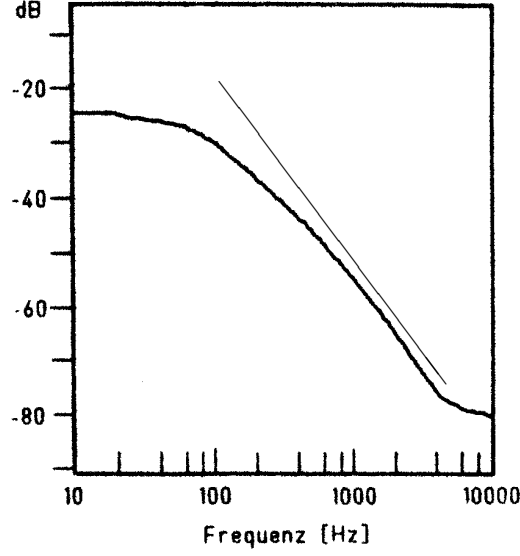
Nach oben ist der Gültigkeitsbereich der „ $-\frac{5}{3}$ -Proportionalität“ durch den Übergang in die molekulare Energiedissipation begrenzt. Je stärker die Turbulenz ausgeprägt ist, desto höher ist die hierfür bezeichnende Wellenzahl. Je höher also z.B. die charakteristische REYNOLDSZahl eines Rührers ist, desto größer ist der von der Turbulenz insgesamt umfaßte Wellenzahlen-, Größenklassen- und Frequenzbereich [226].

Abbildung 4.2 zeigt eine typische *gemessene* Spektralfunktion. Die Darstellung ist doppelt logarithmisch; deswegen nähert sich die Kurve im *universellen Gleichgewichtsbereich* einer Gerade mit der Steigung $-\frac{5}{3}$ an. (Auf der Abszisse ist die *Frequenz* aufgetragen, die über die mittlere Strömungsgeschwindigkeit mit der *Wellenzahl* verknüpft ist.)

4.1.2.2 Charakteristika

KOLMOGOROV erhielt mittels Dimensionsanalyse eine charakteristische Wirbel-(umfangs-)geschwindigkeit v_λ in Abhängigkeit von der Wirbelgröße $\lambda = \frac{1}{w}$ (Kehrwert der Wellenzahl). Im universellen Gleichgewichtsbereich gilt [163]:

$$v_\lambda \approx \sqrt[3]{\epsilon \cdot \lambda} \quad (4.1 - 9)$$



Abbildungung 4.2: Beispiel für eine gemessene Spektralfunktion der Turbulenz [282]. Die Kurvenform für Frequenzen über 3 kHz ist auf ein Erreichen der Meßbereichsgrenze der verwendeten Meßeinrichtung zurückzuführen. Der eingezeichnete Geradenabschnitt hat die Steigung $-\frac{5}{3}$; vgl. hierzu Gleichung 4.1 - 8 auf Seite 56. (Auf der Ordinate ist in der logarithmischen Einheit dB [dezi-Bel] die Amplitude der Geschwindigkeitsschwankungen mit der jeweiligen Frequenz aufgetragen.)*

*Ein Wert von 1 Bel entspricht einer Verzehnfachung der Leistung eines Meßsignals; letzteres ist proportional zum Quadrat der Spannungsamplitude, so daß 2 Bel = 20 dB einer Verzehnfachung der Amplitude der turbulenten Geschwindigkeitsschwankungen entsprechen. (Es wird angenommen, daß der verwendete Meßwertgeber ein geschwindigkeitsproportionales Spannungssignal liefert.)

Hierin ist ϵ der Fluß von kinetischer Turbulenzenergie durch die Kaskade der Wirbelgrößenklassen; dieser ist *global* identisch mit dem spezifischen Leistungseintrag.

Der Übergang von der Wirbel-(klassen-)kaskade zur viskosen Energiedissipation ist durch die kritische REYNOLDSzahl 1 für die Turbulenzwirbel markiert (vgl. Gleichung 4.1 - 2 auf Seite 54):

$$\text{Re}_\lambda = \frac{\lambda \cdot v_\lambda}{\nu} = 1 \quad (4.1 - 10)$$

Diese Gleichung ergibt den folgenden Ausdruck für die Größe λ_0 der kleinsten auftretenden Turbulenzwirbel:

$$\lambda_0 = \frac{\nu}{v_0} \quad (4.1 - 11)$$

Setzt man dieses Ergebnis in Gleichung 4.1 - 9 ein, so ergibt sich die charakteristische Umfangsgeschwindigkeit v_0 der kleinsten, alle Energie dissipierenden Turbulenzwirbel:²

$$v_0 = \sqrt[3]{\epsilon \cdot \frac{\nu}{v_0}} \quad |()^3 \quad (4.1 - 12)$$

$$v_0^3 = \frac{\epsilon \cdot \nu}{v_0} \quad | \cdot v_0; \sqrt[4]{} \quad (4.1 - 13)$$

²Die Umfangsgeschwindigkeit v_λ der Wirbel einer Größenklasse λ kann mit den Geschwindigkeitsschwankungen v' gleichgesetzt werden, die von den Wirbeln dieser Größenklasse verursacht werden.

$$v_0 = \sqrt[4]{\nu \cdot \epsilon} \quad (4.1 - 14)$$

Setzt man dieses Ergebnis wiederum in Gleichung 4.1 - 11 ein, so erhält man die Größenordnung λ_0 dieser kleinsten Wirbel:

$$\lambda_0 = \frac{\nu}{\sqrt[4]{\nu \cdot \epsilon}} = \sqrt[4]{\frac{\nu^3}{\epsilon}} \quad (4.1 - 15)$$

Aus Geschwindigkeit v_0 und Länge λ_0 der kleinsten Wirbel läßt sich schließlich eine charakteristische Zeitkonstante τ_0 für diese Energie viskos dissipierenden Wirbel angeben:

$$\tau_0 = \frac{\lambda_0}{v_0} = \frac{\sqrt[4]{\frac{\nu^3}{\epsilon}}}{\sqrt[4]{\nu \cdot \epsilon}} = \sqrt{\frac{\nu}{\epsilon}} \quad (4.1 - 16)$$

Diese Größen (mit dem Index „0“, bezeichnend das obere Ende des Wellenzahlenbereiches für den „universellen Gleichgewichtsbereich“) werden auch als die *Mikroskalen* der Turbulenz (für Geschwindigkeit, Größe und Zeit) bezeichnet. Sie sind nur von der Energiedissipationsrate ϵ , also dem Energiefluß durch die Wirbelgrößenkaskade, abhängig; die Art der Turbulenzerzeugung hat auf sie keinen Einfluß.

Dissipationsrate ϵ . KOLMOGOROV leitete mit Hilfe der Dimensionsanalyse Gleichung 4.1 - 9 (Seite 57) her. Dieser und andere dimensionsanalytische Wege führen zu folgendem Ausdruck für die lokale Energiedissipationsrate ϵ [45, 161]:

$$\epsilon = C \cdot \frac{u'^3}{L} \quad (4.1 - 17)$$

Hierin bezeichnet u' wieder den zeitgemittelten Betrag der statistischen Geschwindigkeitsschwankungen. Sie kann gemäß Gleichung 4.1 - 5 (Seite 56) durch die Wurzel aus der kinetischen Turbulenzenergie (\sqrt{k}) ersetzt werden.³ L ist, stellvertretend für die charakteristische Größe der Primärwirbel, eine charakteristische Länge (geometrische Abmessung) des Turbulenzerzeugers (z.B. Durchmesser oder Blatthöhe eines Rührorgans).

Die Proportionalitätskonstante C ist vielfach experimentell bestimmt worden [161]; wenn die verwendete Länge L tatsächlich dem Durchmesser der Primärwirbel entspricht, hat sie offensichtlich den Wert 1. Solche Werte für L entsprechen beim Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer der Hälfte der Blatthöhe.

4.1.3 Stoffaustausch

Der Stoffaustausch zwischen Gas und Flüssigkeit wurde bereits in Abschnitt 2.3.2 auf Seite 23 diskutiert; dabei wurden Filmtheorie und Penetrations-/Oberflächenenerneuerungstheorie beschrieben. Im folgenden soll nun der Einfluß der Turbulenz auf den linearen Stoffaustauschkoeffizienten β_l untersucht werden.

³Die zitierte Gleichung (4.1 - 5, auf Seite 56) enthält noch den Faktor $\frac{1}{2}$; dieser geht in die Proportionalitätskonstante C ein. Die Gleichung lautet dann, nach L aufgelöst:

$$L = C \cdot \frac{k^{\frac{3}{2}}}{\epsilon} \quad (4.1 - 18)$$

In dieser Form wird die Gleichung häufig zur Bestimmung einer charakteristischen Turbulenzlänge aus Simulationsergebnissen verwendet (vgl. z.B. Abschnitt 4.3.3.3, auf Seite 84).

Den „Turbulenztheorien“ für den Stoffaustausch liegt folgende Modellvorstellung zu Grund: Turbulenzwirbel streifen mit ihrer Rotationsbewegung die Phasengrenzfläche; dabei haben kleinste Fluidelemente in der Wirbelperipherie für eine begrenzte Zeit lang direkten Kontakt mit der Grenzfläche. Danach werden sie wieder von der Grenzfläche abgezogen und geben ihre Sauerstoffbeladung im inneren der Flüssigkeit durch molekulare Diffusion oder durch Zerfall des Wirbels weiter.

Mit dieser Modellvorstellung und den oben hergeleiteten Gleichungen zur Beschreibung von Turbulenz ist es jetzt möglich, die Kontaktzeit (Expositionszeit) t_e in der Penetrationstheorie mit den charakteristischen Turbulenzgrößen auszudrücken (vgl. Abschnitt 2.3.2.2 auf Seite 24).

4.1.3.1 Großwirbel

Die ersten Arbeiten über Turbulenz und Stoffaustausch betrachteten eine ebene, freie Flüssigkeitsoberfläche, unter der in der Flüssigkeit (z.B. durch ein Gitter in der Strömung erzeugte [97]) Turbulenz herrscht. Sie nahmen an, daß der Stoffaustausch im wesentlichen von den *großen* Wirbeln des Turbulenzspektrums vermittelt wird. Diese Annahme wurde 1990 für gittergenerierte Turbulenz [157] und 1998 für windgetriebene Turbulenz [216] bestätigt.

Zur Anwendung der Penetrationstheorie (Gleichung 2.3 - 23, auf Seite 24) muß die Kontakt- oder Expositionszeit t_e durch die Eigenschaften der großen Turbulenzwirbel (angezeigt durch den Buchstaben Λ) ausgedrückt werden. Hierfür wird die Zeit t_e als Quotient aus dem Wirbeldurchmesser Λ und der Geschwindigkeit v_Λ der Großwirbel aufgelöst [97]:

$$t_e = \frac{\Lambda}{v_\Lambda} \quad (4.1 - 19)$$

Herleitung. Da die großen Wirbel den größten Teil der kinetischen Turbulenzenergie enthalten, kann ihre Energie näherungsweise mit der gesamten kinetischen Turbulenzenergie k gleichgesetzt werden. Somit kann auch die *Geschwindigkeit* v_Λ der großen Wirbel bestimmt werden:

$$v_\Lambda \approx \sqrt{v'^2} = \sqrt{2 \cdot k} \quad (4.1 - 20)$$

Um die Expositionszeit t_e zu definieren, muß auch die mittlere Weglänge an der Phasengrenze definiert werden. Diese kann näherungsweise mit dem Durchmesser Λ der großen, energiereichen Wirbel angesetzt werden. Mit Gleichung 4.1 - 9 (Seite 57) kann aus der Geschwindigkeit v_Λ der Wirbel (s. den vorigen Abschnitt) ihre Größe bestimmt werden:

$$\begin{aligned} \Lambda &= \frac{v_\Lambda^3}{\epsilon} \\ &= \frac{(2 \cdot k)^{\frac{3}{2}}}{\epsilon} \end{aligned} \quad (4.1 - 21)$$

Mit Gleichung 2.3 - 23 (Seite 24) von HIGBIE ergibt sich nun:

$$\begin{aligned} \beta_l &= \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \sqrt{\frac{\mathcal{D} \cdot v_\Lambda}{\Lambda}} \\ &= \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \sqrt{\frac{\mathcal{D} \cdot \epsilon}{2 \cdot k}} \end{aligned} \quad (4.1 - 22)$$

4.1.3.2 Kleinwirbel

Es ist die Annahme zu überprüfen, ob die *großen* Wirbel tatsächlich den größten Beitrag zum Stoffübergang leisten. Die Kontaktzeit t_e in der Penetrationstheorie wird aus dem Wirbeldurchmesser λ und die Wirbelgeschwindigkeit v_λ definiert:⁴

$$t_e = \frac{\lambda}{v_\lambda} \quad (4.1 - 23)$$

Für v_λ wird Gleichung 4.1 - 9 (Seite 57) eingesetzt:

$$t_e = \frac{\lambda}{\sqrt[3]{\lambda \cdot \epsilon}} = \frac{\lambda^{\frac{2}{3}}}{\sqrt[3]{\epsilon}} \quad (4.1 - 24)$$

Die Expositionszeit t_e steigt also eindeutig mit der Wirbelgröße λ . Der Stoffdurchgangskoeffizient *sinkt* aber mit steigender Kontaktzeit t_e :

$$\beta_l \sim \frac{1}{\sqrt{t_e}} = \frac{\sqrt[6]{\epsilon}}{\lambda^{\frac{1}{3}}} \quad (4.1 - 25)$$

Kolmogorovwirbel. Die größten Anteile am Stoffdurchgangskoeffizienten werden also von den Wirbelklassen mit den *kleinsten* Wirbeldurchmessern $\lambda = \lambda_0$ bestimmt [162]. Deren Größe (λ_0) hängt gemäß Gleichung 4.1 - 15 (Seite 59) nur von Viskosität ν und spezifischer Energiedissipationsrate ϵ ab:

$$\lambda_0 = \sqrt[4]{\frac{\nu^3}{\epsilon}} \quad (4.1 - 26)$$

Setzt man diese Gleichung in Gleichung 4.1 - 24 (s.o.) ein, so erhält man die Kontaktzeit t_e für den Beitrag dieser Wirbelklasse zum Stoffaustausch:

$$t_{e,0} = \frac{\lambda_0^{\frac{2}{3}}}{\sqrt[3]{\epsilon}} = \frac{\sqrt[6]{\frac{\nu^3}{\epsilon}}}{\sqrt[3]{\epsilon}} = \sqrt{\frac{\nu}{\epsilon}} \quad (4.1 - 27)$$

Dieses Ergebnis ist identisch mit der charakteristischen Zeitkonstante τ_0 für die kleinsten, viskos Energie dissipierenden Turbulenzwirbel („KOLMOGOROV-Wirbel“), vgl. Gleichung 4.1 - 16 auf Seite 59.

Neue Gleichung. Diese neue Definition für die Expositionszeit (Gleichung 4.1 - 27, s.o.) kann direkt in die Definitionsgleichung der Penetrationstheorie (2.3 - 23, auf Seite 24) eingesetzt werden:

$$\beta_l = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \sqrt{D} \cdot \sqrt[4]{\frac{\epsilon}{\nu}} \quad (4.1 - 28)$$

Die Abhängigkeit des Stoffaustausches von der vierten Wurzel der Energiedissipation (global: des Leistungseintrages) wurde in zahllosen experimentellen Untersuchungen empirisch bestätigt, und zwar sowohl für Blasen [150] als auch für disperse Feststoffe [274].

⁴Hier wird wieder der *Klein*buchstabe λ verwendet, weil zunächst Wirbel *beliebiger* Größenklassen betrachtet werden sollen.

4.1.3.3 Immobile Phasengrenzen

Die bisher aufgestellten Gleichungen 4.1 - 22 (Seite 60) und 4.1 - 28 enthalten eine festgelegte Proportionalität des Stoffdurchgangskoeffizienten β_l mit der Wurzel des Diffusionskoeffizienten \mathcal{D} . In der Realität wurde aber für den Stoffaustausch an festen Körpern und Partikeln (sowie an *kleinen* Blasen) die Abhängigkeit $\beta_l \sim \mathcal{D}^{\frac{2}{3}}$ gefunden (vgl. z.B. Gl. 2.3 - 27, auf Seite 25). Um dies berücksichtigen zu können, wird die Abhängigkeit von \mathcal{D} dimensionslos gemacht; sie kann dann mit einem beliebigen Exponenten $b_{\mathcal{D}}$ versehen werden [162, 265, 266]. Die beiden anfangs genannten Gleichungen nehmen dann folgende Formen an (vgl. Gl. 2.3 - 25, auf Seite 25):

$$\beta_l = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \left(\frac{\mathcal{D}}{\nu}\right)^{b_{\mathcal{D}}} \cdot \sqrt{\frac{\nu \cdot \epsilon}{2 \cdot k}} \quad (4.1 - 29)$$

$$\beta_l = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \left(\frac{\mathcal{D}}{\nu}\right)^{b_{\mathcal{D}}} \cdot \sqrt[4]{\nu \cdot \epsilon} \quad (4.1 - 30)$$

Der Quotient $\frac{\mathcal{D}}{\nu}$ ist der Kehrwert der sog. SCHMIDTzahl Sc . Der Exponent $b_{\mathcal{D}}$ hat für fluide Phasengrenzen den Wert $\frac{1}{2}$ und für immobile Phasengrenzen (erfahrungsgemäß) den Wert $\frac{2}{3}$. (Fluide Phasengrenzen sind bei ebenen, freien Flüssigkeitsoberflächen und an großen Gasblasen, sowie in kontaminationsfreien Flüssigkeiten zu erwarten. Alle Festkörper [Partikeln], *kleine* Blasen und Blasen in kontaminierten Flüssigkeiten [Leitungswasser, biotechnologische Medien] haben im Kontakt mit der Flüssigkeit eine *immobile* Phasengrenzfläche. Dies führt zur veränderten Abhängigkeit vom Diffusionskoeffizienten \mathcal{D} , vgl. Abschnitte 2.2.3.2 [S. 18] und 2.3.2.3 [S. 25]. Außerdem sind für immobile Phasengrenzen die Zahlenwerte für β_l nur höchstens halb so groß wie für frei bewegliche [52, 228].)

Zwei Alternativen. Zuletzt bleibt zu diskutieren, welche der beiden Gleichungen (4.1 - 29 und 4.1 - 30) im aufzustellenden Modell für den Stoffaustausch in begasten Rührkesseln anzuwenden ist.

Für Blasen kann Gleichung 4.1 - 29 niemals sinnvoll sein, weil Blasen i.d.R. viel kleiner sind als die *großen* Turbulenzwirbel. Sie würden von diesen Wirbeln erfaßt und mitgerissen werden, statt daß die Wirbel den Stoffaustausch an den Blasen intensivieren, indem sie sozusagen an ihnen „reiben“. Für Blasen ist also sicherlich nur Gleichung 4.1 - 30 sinnvoll.

Für die freie Oberfläche im Rührkesselreaktor hingegen sollte Gleichung 4.1 - 29 zutreffen, da die Gültigkeit dieser Gleichung für verschiedene analoge Situationen bereits experimentell gezeigt werden konnte [97, 157, 216] (vgl. auch Abschnitt 4.1.3.1, auf Seite 60).

4.1.4 Blasenverteilung

In Abschnitt 2.2.2 (Seite 17) wurde festgestellt, daß Koaleszenz bei Bioprozessen in begasten Rührkesseln vernachlässigt werden kann. Die Blasengröße wird also von den Mechanismen bestimmt, die die Blasen zerteilen, sofern nicht die Primärblasen bereits so klein sind, daß sie allen Belastungen im turbulenten Strömungsfeld im Reaktor standhalten.

4.1.4.1 Kräftebilanz

Ob eine Blase zerteilt wird, hängt von einer Kräftebilanz ab – wenn die Scherkräfte, die auf die Blase wirken, die Oberflächenspannung überwiegen, die normalerweise die Blase zusammenhält, so wird sie zerteilt.

Die Kraft, die die strömende Flüssigkeit auf eine Grenzfläche ausübt, hängt von ihrer Geschwindigkeit ab. Der *Staudruck* der Flüssigkeit, der identisch ist mit ihrer *volumenbezogenen* kinetischen

Energie, lautet:

$$p_v = \frac{\rho}{2} v^2 \quad (4.1 - 31)$$

Druck hat die Dimension „Kraft je Fläche“; Multiplikation mit dem Blasendurchmesser d_{Bl} als charakteristischer Länge ergibt eine Größe der Dimension „Kraft je Länge“. Diese Größe kann direkt mit der Oberflächenspannung σ ins Verhältnis gesetzt werden, um obige Kräftebilanz aufzustellen.

Dieses Kräfteverhältnis wird in der dimensionslosen WEBERzahl ausgedrückt:

$$\text{We} = \frac{\rho \cdot v^2 \cdot d_{\text{Bl}}}{\sigma} \quad (4.1 - 32)$$

Übersteigt die reale WEBERzahl an einer Blase einen kritischen Wert $\text{We}_{\text{krit.}}$, so zerreißt die Blase. Literaturwerte für die kritische Weberzahl von Gasblasen in Wasser liegen zwischen 0,6 und 14 [237]. Neuere Arbeiten zeigen, daß der wahre Wert nahe 1 liegen muß [79].

4.1.4.2 Turbulenz

Für die Geschwindigkeit v wird in turbulenter Strömung die Rotationsgeschwindigkeit derjenigen Wirbel eingesetzt, die tatsächlich die größten Scherkräfte auf die Blase ausüben. Dies sind diejenigen Wirbel, deren Durchmesser ungefähr dem Blasendurchmesser entspricht. Gemäß Gleichung 4.1 - 9 (Seite 57) gilt für die (Rotations-) Geschwindigkeit v_λ dieser Wirbel:⁵

$$v_\lambda = \sqrt[3]{\epsilon \cdot \lambda} = \sqrt[3]{\epsilon \cdot d_{\text{Bl}}} \quad (4.1 - 33)$$

Dies wird in Gleichung 4.1 - 32 eingesetzt, so daß folgt:

$$\text{We} = \frac{\rho \cdot \epsilon^{\frac{2}{3}} \cdot d_{\text{Bl}}^{\frac{5}{3}}}{\sigma} \quad (4.1 - 34)$$

Hieraus läßt sich der maximale stabile Blasendurchmesser d_{max} bestimmen [202, 314]:

$$d_{\text{max}} = \left(\text{We}_{\text{krit.}} \cdot \frac{\sigma}{\rho \cdot \epsilon^{\frac{2}{3}}} \right)^{\frac{3}{5}} = \text{We}_{\text{krit.}}^{\frac{3}{5}} \cdot \left(\frac{\sigma}{\rho} \right)^{\frac{3}{5}} \cdot \epsilon^{-\frac{2}{5}} \quad (4.1 - 35)$$

Diese Proportionalität ($d_{\text{max}} \sim \epsilon^{-\frac{2}{5}}$) wurde in experimentellen Studien bestätigt [237].

Veröffentlichte Zahlenwerte für die kritische WEBERzahl variieren erheblich; dies liegt, wenigstens zum Teil, an unterschiedlichen Definitionen: Manche Autoren verwenden den Sauterdurchmesser d_{32} , andere den (stückzahlgewichteten) arithmetischen Mittelwert d_{10} . Manche Autoren setzen d_{max} mit der mittleren Blasengröße einer (von turbulenter Blasenverteilung bestimmten) Verteilung gleich; für andere ist d_{max} mit der *größten* in der Verteilung vorkommenden Blasengröße identisch [236].⁶

⁵An dieser Stelle wird angenommen, daß relativ kleine Wirbel, die eher nach KOLMOGOROV als nach TAYLOR zu beschreiben sind, für die Blasenverteilung verantwortlich sind; dies wurde durch Messungen von Turbulenzspektra bestätigt [72]. Die großen Primärwirbel in einem Rührkessel mit Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer sind etwa so groß wie die halbe Rührerblatthöhe [275]. Diese ist selbst bei kleinen Laborreaktoren erheblich größer als die auftretenden Gasblasen.

⁶Die letztgenannte Variante erscheint wenig einleuchtend – welcher Mechanismus sollte dann die Bildung aller kleineren Blasen in der Verteilung erklären?

Weiterhin wurde Turbulenz experimentell auf unterschiedliche Arten (Rührer, Rohrströmung) erzeugt. Außerdem ist die Definition eines korrekten Wertes für die spezifische Energiedissipation ϵ schwierig: In Rührkesseln wurde z.B. nicht immer beachtet, daß die meiste eingebrachte mechanische Leistung direkt im Bereich des Rührers dissipiert wird und dort somit eine weit überdurchschnittliche Energiedissipationsrate ϵ herrscht.

Dynamik. Die Blasenverteilung unterliegt einer gewissen *Dynamik*. Nicht jede Blase, die in ein turbulentes Strömungsfeld gerät, das rechnerisch zur Überschreitung der kritischen WEBERZahl führt, wird sofort zerteilt. Statt dessen hängt die *Wahrscheinlichkeit*, daß eine Blase von einem bestimmten Turbulenzgrad zerteilt wird, davon ab, wie lange die Turbulenz auf die Blasen einwirkt. Wird diese Tatsache vernachlässigt, ergibt sich bei der Anpassung von Modellparametern an Meßwerte z.B. ein entsprechend veränderter Wert für die kritische Weberzahl.

Der Einfluß lokaler Turbulenz (Energiedissipation) auf die Partikelgröße wurde auch für Myzelflocken und Pellets hyphenbildender Pilze untersucht, wobei sich ähnliche Zusammenhänge wie Gleichung 4.1 - 35 ergaben [255, 256, 257].

4.1.5 Dispersion

Laminare Transportvorgänge. Eine gelöste Substanz kann sich auf Grund der BROWNSchen Molekularbewegung durch ihr Lösungsmittel bewegen. Wenn ein (räumliches) Konzentrationsgefälle herrscht, führt dies zu einem effektiven Massenstrom J_s der gelösten Komponente s ; dieser ist dem Konzentrationsgradienten $\frac{dc_s}{dx}$ entgegengerichtet und sucht ihn auszugleichen (1. FICKSches Gesetz):

$$J_s = -A \cdot \mathcal{D} \cdot \frac{dc_s}{dx} \quad (4.1 - 36)$$

(\mathcal{D} ist der Diffusionskoeffizient [in $\frac{m^2}{s}$]; A ist die Querschnittsfläche des betrachteten [diffusiven] Massenstromes.)

Diffusion ist ein rein *mikroskopischer* Vorgang. Ihm gegenüberzustellen ist der *makroskopische* Stofftransport durch *Konvektion*. Hier wird Materie dadurch transportiert, daß das Lösungsmittel mit der Geschwindigkeit u strömt und die in ihm gelöste Substanz s mitnimmt:

$$J_s = A \cdot u \cdot c_s \quad (4.1 - 37)$$

Turbulenter Stofftransport. In einem turbulenten Strömungsfeld führt das Fluid zusätzlich ungeordnete, in dieser Betrachtung *mesoskopische* Bewegungen aus (Turbulenzwirbel). Auch hierbei transportiert es gelöste Substanz; da aber keine Vorzugsrichtung existiert, gleicht dieser Stofftransport der Diffusion: Er folgt nur einem vorhandenen Konzentrationsgefälle; ohne diesen ist er effektiv gleich null.

Dieses Phänomen wird häufig *Dispersion* genannt. Seine mathematische Beschreibung gleicht derjenigen der Diffusion; der molekulare Diffusionskoeffizient \mathcal{D} wird lediglich durch den turbulenzabhängigen Dispersionskoeffizienten \mathcal{D}_t ersetzt. Dessen Bestimmung wird im Zusammenhang mit der Beschreibung des k, ϵ -Turbulenzmodelles in Abschnitt 4.2.2.5 (Seite 70) beschrieben.

4.1.6 Zusammenfassung

Dieser Abschnitt (4.1) führte zuerst mit einer anschaulichen Modellvorstellung (Wirbelgrößenklassenkaskade) in das Phänomen der Turbulenz ein. Anschließend wurde zunächst die Spektralfunktion $E(w)$ des wellenzahlabhängigen Energiespektrums der Turbulenz eingeführt; über einfache,

dimensionsanalytische Ansätze wurde dann eine mathematische Charakterisierung von Turbulenz mit charakteristischen Längen-, Zeit- und Geschwindigkeitsmaßen eingeführt. Diese Charakteristika werden vor allem für die jeweils *kleinsten* Wirbel des gesamten Turbulenzspektrums angegeben; sie lassen sich (wiederum dimensionsanalytisch) auf die Viskosität ν und die spezifische Energiedissipationsrate ϵ zurückführen.

Mit Hilfe der eingeführten Turbulenzcharakteristika können turbulenzabhängige Vorgänge, nämlich Stoffaustausch, Blasenverteilung und turbulente Dispersion, mit den Zustandsgrößen k und ϵ zur modellmäßigen Beschreibung von Turbulenz in Beziehung gesetzt werden. Stoffaustausch erweist sich als proportional zur vierten Wurzel der spezifischen Energiedissipationsrate ϵ . (Für *große* Blasen und freie Oberflächen ergibt sich alternativ eine Proportionalität zur Quadratwurzel der kinetischen Turbulenzenergie k). Die (turbulenzabhängige) maximale stabile Blasengröße ist proportional zu $\epsilon^{-\frac{2}{5}}$.

Diffusionsvorgänge (einschließlich Impulstransport durch Viskosität sowie Wärmeleitung) werden durch Turbulenz u.U. drastisch beschleunigt; der effektive Diffusionskoeffizient errechnet sich nach Modellgleichungen, wie sie z.B. im k,ϵ -Turbulenzmodell für die numerische Strömungssimulation (s. nächsten Abschnitt) verwendet werden.

4.2 Numerische Strömungssimulation

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Modell für Stoffaustausch und -transport in begasten Rührkesseln auf der Grundlage *numerischer Strömungssimulation* entwickelt. Deswegen wird im folgenden die grundlegende Theorie der numerischen Strömungssimulation mit der *Finite-Volumen-Methode* dargestellt.

4.2.1 Erhaltungsgleichungen

Die allgemeine mathematische Beschreibung von Strömungsdynamik basiert auf den physikalischen Erhaltungssätzen für Masse, Impuls und (nur bei der Betrachtung von Wärmetransport zusätzlich) Energie. Für diese Erhaltungsgrößen werden differentielle Bilanzgleichungen aufgestellt, die sogenannten NAVIER–STOKES–Gleichungen. In ihnen werden alle Stoff- bzw. Impulstransportmechanismen und sonstigen Einflußfaktoren für die *lokale* Erhaltungsgröße in einem (kleinen oder infinitesimalen) Bilanzkontrollvolumen aufsummiert.

Die Erhaltungsgrößen werden als *Konzentration* (Masse je Volumen, „Partialdichte“) und *volumenbezogener Impuls* (Dichte mal Geschwindigkeit) ausgedrückt. Zusätzlich wird eine *totale Massenbilanz* über alle stofflichen Komponenten aufgestellt.

4.2.1.1 Stofftransport

Die Grundmechanismen des Stofftransportes wurden bereits am Ende des vorigen Hauptabschnitts beschrieben (s. Abschnitt 4.1.5). Eine Erhaltungsgleichung wird zunächst grundsätzlich für ein definiertes *Bilanzvolumen* aufgestellt: Die zeitliche Änderung der Stoffmenge im Bilanzvolumen entspricht der Summe aller ein- und ausgehenden Stoffströme (Konvektion und Dispersion); hinzu kommt ggf. Stoffproduktion oder -verbrauch, z.B. durch (bio-) chemische Reaktionen.

Chemische Komponenten. Für den einfachsten Fall eindimensionaler Strömung gilt für die zeitliche Änderung $\frac{dc}{dt}$ einer Konzentration im Bilanzvolumen $V = A \cdot \Delta x = A \cdot (x_2 - x_1)$:

$$\frac{dm}{dt} = V \cdot \frac{dc}{dt} = J_{x_1} - J_{x_2} + S = A \cdot (j_{x_1} - j_{x_2}) + V \cdot s_v$$

$$\frac{dc}{dt} = \frac{j_{x_1} - j_{x_2}}{x_2 - x_1} + s_v = -\frac{\Delta j}{\Delta x} + s_v \quad (4.2 - 38)$$

Hier bezeichnet J_x den (gesamten) Stoffstrom an der Stelle x ; j_x steht für die (flächenbezogene) Stoffstromdichte, ebenfalls an der Stelle x . S ist ein Term für Produktion (Quellterm), $s_v = \frac{S}{V}$ ist derselbe volumenbezogen. Das Bilanzvolumen liegt zwischen den Positionen x_1 und $x_2 > x_1$.

Die Bilanzgleichung enthält *Differenzen* zwischen verschiedenen Positionen im Raum. Wenn nun das Bilanzkontrollvolumen unendlich klein wird, findet der sog. Grenzübergang statt, und die Differenzen gehen in *Differentiale* über. Wir fügen nun für J die Summe der Gleichungen für Konvektion 4.1 - 37 und Diffusion 4.1 - 36 (Seite 64) ein und erhalten:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \underbrace{-\frac{\partial}{\partial x}(u \cdot c)}_{\text{Konvektion}} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial x}\left(\mathcal{D} \cdot \frac{\partial c}{\partial x}\right)}_{\text{Diffusion}} + s_v \quad (4.2 - 39)$$

Diese Differentialgleichung ist die Grundlage der numerischen Stofftransportsimulation⁷ in einem definierten Strömungsfeld. Für den Diffusionskoeffizienten \mathcal{D} muß in einem *turbulenten* Strömungsfeld der turbulente Dispersionskoeffizient \mathcal{D}_t eingesetzt werden (vgl. Abschnitt 4.1.5, auf Seite 64). Dessen Berechnung wird in Abschnitt 4.2.2.5 (Seite 70) beschrieben.

Gesamt-Massen-Bilanz. Gleichung 4.2 - 39 kann leicht zur Bilanzgleichung für die Gesamtmasse umgeformt werden. Man tauscht die Konzentration c durch die Dichte ρ aus und erhält die sogenannte *Kontinuitätsgleichung*. Hierin muß der Quellterm s_v notwendigerweise null sein, weil die Masse eine echte Erhaltungsgröße ist, und der Term für diffusiven Stofftransport fällt weg:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x}(u \cdot \rho) \quad (4.2 - 40)$$

Veränderungen der Dichte können sich aus der Kompressibilität eines Gases, aus der veränderlichen Zusammensetzung eines Gemisches oder aus Temperaturveränderungen ergeben.

4.2.1.2 Impulstransport

Die aufgestellten Gesetze für den Stofftransport können in analoger Weise auch auf den Transport von Impuls angewendet werden:⁸

Geschwindigkeiten und Impulse sind gerichtete (vektorielle) Größen; dies wird mathematisch durch die Zerlegung in Komponenten entlang den Hauptrichtungen eines Koordinatensystems realisiert:

$$\mathbf{u} = \mathbf{i} \cdot u_x + \mathbf{j} \cdot u_y + \mathbf{k} \cdot u_z \quad (4.2 - 41)$$

Wir werden im folgenden die kompakte sog. *Tensorschreibweise* benutzen. Ein Index i bedeutet, daß die Gleichung bzw. der Term für jede der drei Raumrichtungen aufzustellen ist (EINSTEINSche Summenkonvention). Ein Index j hat unabhängig von i dieselbe Funktion; der doppelte Index ij steht also für alle neun möglichen Kombinationen dreier beliebiger Hauptrichtungen.

⁷Gemeint ist hier der Transport einer gelösten chemischen Substanz im strömenden Fluid.

⁸Die Analogie zwischen dem *diffusiven* Transport von Masse (gelöstem Stoff) und Impuls ist oft unanschaulich. Sie wird klarer, wenn man bedenkt, daß jeder diffusive Transport einem *Gefälle* folgt – im Falle des Impulstransportes einem Geschwindigkeitsgradienten (Schergefälle $\dot{\gamma}$). Dieser Impulstransport geschieht somit *orthogonal* zur vorherrschenden Strömungsrichtung.

An die Stelle der Konzentration c in Gleichung 4.2 - 39 tritt der volumenbezogene Impuls $\varrho \cdot u_i$; der Diffusionskoeffizient \mathcal{D} wird durch die kinematische Viskosität $\nu = \frac{\mu}{\varrho}$ ($\Leftrightarrow \mu = \nu \cdot \varrho$) ersetzt:

$$\frac{\partial(\varrho \cdot u_i)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x_j}(u_j \cdot \varrho \cdot u_i) + \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_j} \left(\mu \cdot \left[\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} - \overbrace{\frac{2}{3} \frac{\partial u_l}{\partial x_l} \cdot \delta_{ij}}^{\text{komp.}} \right] \right)}_{\tau_{ij}} + s_v + \frac{\partial p}{\partial x_i} \quad (4.2 - 42)$$

Jeder Term in dieser Gleichung entspricht dem Produkt aus einer Beschleunigung und der Dichte, was formal einem *Druckgradienten* entspricht. Der neu hinzugekommene, letzte Term ist das Druckgefälle in der Strömungsrichtung x_i .

Weitere Terme. Der *Schubspannungstensor* τ_{ij} in Gleichung 4.2 - 42 enthält einen mit „komp.“ markierten Term, der die innere Reibung bei der Volumenausdehnung kompressibler Fluide beschreibt; dieser fällt für inkompressible Fluide fort. (Er enthält das KRONECKERSche Delta δ_{ij} , den analogen Tensor zur Einheitsmatrix.)

In rotierenden, rotationssymmetrischen Räumen ist es effizient, in einem rotierenden Koordinatensystem zu rechnen. Hierfür können die NAVIER-STOKES-Gleichungen auch in Zylinderkoordinaten ausgedrückt werden. Außerdem kommen in der Impulsgleichung für bestimmte Raumrichtungen spezielle Terme hinzu: In radialer Richtung wirkt die Zentrifugalkraft (volumenbezogen: $F_Z = \varrho \cdot \omega^2 \cdot r$), in tangentialer Richtung die CORIOLISKraft (volumenbezogen: $F_C = \varrho \cdot \omega \cdot u_r$).

Ein zusätzlicher Term in einer Raumrichtung kann von der Erdbeschleunigung g herrühren, er würde in Gleichung 4.2 - 42 die Form „ $\varrho \cdot g$ “ haben.

4.2.2 Turbulenzterme

Turbulenz besteht aus teilweise sehr kleinräumigen und kurzlebigen Strömungsphänomenen. Deren direkte Simulation bis ins kleinste Detail ist nur möglich, solange die kleinsten und größten Turbulenzstrukturen zumindest annähernd in derselben Größenordnung bezüglich Größe und Zeitdauer liegen. Dies gilt nur für sehr *schwache* Turbulenz, im Grenzgebiet zur Laminarität.

Für mittlere und hochturbulente Strömungen ist die direkte numerische Simulation der turbulenten Geschwindigkeitsschwankungen und Wirbelsysteme nicht praktikabel (vgl. Abschnitt 4.2.4.3, auf Seite 74). Statt dessen wird Turbulenz i.d.R. „makroskopisch“ beschrieben, indem mathematische Beziehungen für die von der Turbulenz vermittelten zusätzlichen Transportphänomene aufgestellt werden.

Im folgenden soll erläutert werden, wie diese zusätzlichen, turbulenzabhängigen Transportvorgänge auf die oben eingeführten Turbulenzgrößen k und ϵ zurückgeführt werden können (vgl. Abschnitt 4.1.2, auf Seite 55). Es werden sich hierbei *zusätzliche Terme* für die Auswirkungen von Turbulenz in den oben aufgestellten NAVIER-STOKES-Gleichungen (Gleichung 4.2 - 39 und 4.2 - 42) ergeben.

4.2.2.1 Reynoldssche Zeitmittelung

In turbulenter Strömung ist die globale Strömung von lokalen, stochastischen Geschwindigkeitsschwankungen der Turbulenzwirbel überlagert:

$$u_i = \overline{u_i} + u'_i \quad (4.2 - 43)$$

Hierin steht u_i stellvertretend für alle auftretenden Größen, auch skalare wie z.B. Konzentrationen. Mittelt man u_i kontinuierlich über einen Zeitraum, der die Zeitkonstante der größten vorkommenden Turbulenzwirbel deutlich übersteigt, erhält man $\overline{u_i}$ [262, 127].

Gleichung 4.2 - 43 (im vorigen Absatz) wird in die NAVIER-STOKES-Gleichungen 4.2 - 39 (Seite 66) und 4.2 - 42 eingesetzt. Nach Trennung der Variablen $\overline{u_i}$ und u'_i erhält man die – den NAVIER-STOKES-Gleichungen sehr ähnlichen – sog. REYNOLDS-Gleichungen. Diese enthalten statt u_i nun $\overline{u_i}$. Außerdem kommt jeweils ein sog. REYNOLDSTERM hinzu: Für chemische Komponenten (Gl. 4.2 - 39 [S. 66]) lautet dieser „ $-\frac{\partial}{\partial x}(u' \cdot c')$ “; in der Impulsgleichung (Gl. 4.2 - 42 [S. 67]) heißt er „ $-\frac{\partial}{\partial x_j}(\varrho \cdot \overline{u'_i \cdot u'_j})$ “.

Der Ausdruck $\varrho \cdot \overline{u'_i \cdot u'_j}$ ist der REYNOLDSSche Schubspannungstensor τ'_{ij} . Er ist ein *symmetrischer* Tensor, weil für ihn die Gleichung $u'_i \cdot u'_j = u'_j \cdot u'_i$ gilt; er wird also durch *sechs* Skalare eindeutig beschrieben.

Die turbulenten Geschwindigkeitsschwankungen verursachen also zusätzliche Scherkräfte und Massenströme (gelöster Komponenten) in der Flüssigkeit. Zur Strömungs- und Stofftransportberechnung müssen diese durch andere, faßbare Größen zur Beschreibung der Turbulenz ausgedrückt werden.

4.2.2.2 Boussinesq-Hypothese

Nach der 1877 von BOUSSINESQ eingeführten Annahme haben die von der Turbulenz hervorgerufenen zusätzlichen Stoffströme und Schubspannungen (Scherkräfte = Impulsströme) keine Vorzugsrichtung und sind formal rein diffusiver Natur [40, 127]. Die Flußdichte und Schubspannungen werden daher in Analogie zu den diffusiven Termen der NAVIER-STOKES-Gleichungen (4.2 - 39 und 4.2 - 42, auf Seite 67) neu formuliert:

$$u' \cdot c' = -\mathcal{D}_t \cdot \frac{\partial c}{\partial x} \quad (4.2 - 44)$$

$$\tau'_{ij} = \varrho \cdot \overline{u'_i \cdot u'_j} = -\mu_t \cdot \left(\frac{\partial u_i}{\partial u_j} + \frac{\partial u_j}{\partial u_i} \right) + \overbrace{\varrho \cdot \frac{2}{3} \cdot k \cdot \delta_{ij}}^{\text{komp.}} \quad (4.2 - 45)$$

Hierin ist k die spezifische (massenbezogene) kinetische Turbulenzenergie (vgl. Gleichung 4.1 - 5, auf Seite 56):

$$k = \frac{1}{2} \sum_i \overline{u_i'^2} \quad (4.2 - 46)$$

4.2.2.3 Prandtl-Hypothese

Die turbulenten Dispersionskoeffizienten \mathcal{D}_t für Stoff und μ_t für Impuls (turbulente Viskosität) müssen für die Strömungsberechnung durch zugängliche Größen ausgedrückt werden.

Die turbulente Viskosität ist über die REYNOLDSSchen Schubspannungen τ'_{ij} definiert:

$$\tau'_{ij} = -\mu_t \cdot \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \quad (4.2 - 47)$$

Eine Schubspannung ist identisch mit der (flächenbezogenen) Stromdichte $\dot{\psi}$ des Impulses $\Psi = m \cdot u$ durch eine Fläche A . Der Impuls wird durch die Turbulenzwirbel transportiert. PRANDTL führte 1925 an dieser Stelle die Vorstellung einer mittleren freien Weglänge („Mischungslänge“)

ℓ für die Turbulenzwirbel ein. Mit der Wirbelgeschwindigkeit u' und der mittleren (globalen) Strömungsgeschwindigkeit u gilt [84, 248]:

$$\tau'_{ij} = -\varrho \cdot u' \cdot \ell \cdot \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \quad (4.2 - 48)$$

Die Wirbel- oder Schwankungsgeschwindigkeit u' kann ihrerseits durch die PRANDTLsche Mischungslänge ℓ ausgedrückt werden:

$$|u'| = \ell \cdot \left| \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right| \quad (4.2 - 49)$$

Es ergibt sich für den REYNOLDSSchen Schubspannungstensor:

$$\tau'_{ij} = -\varrho \cdot \ell^2 \cdot \left| \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right| \cdot \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \quad (4.2 - 50)$$

Für die turbulente Viskosität μ_t gilt somit:

$$\mu_t = \varrho \cdot \ell^2 \cdot \left| \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right| \quad (4.2 - 51)$$

4.2.2.4 Kolmogorov-Gleichung

Nach der PRANDTLschen Hypothese (s. vorigen Abschnitt) entspricht die kinematische turbulente Viskosität $\nu_t = \frac{\mu_t}{\varrho}$ dem Produkt aus der PRANDTLschen Mischungslänge ℓ und einer charakteristischen Geschwindigkeit:

$$\nu_t = \ell^2 \cdot \left| \frac{du}{dx} \right| \rightsquigarrow \nu_t \sim \ell \cdot |u'| \quad (4.2 - 52)$$

Der mittlere Betrag der Geschwindigkeitsschwankungen kann auf die spezifische kinetische Turbulenzenergie k zurückgeführt werden:

$$|u'| = \sqrt{u'^2} \approx \sqrt{u'^2} = \sqrt{2 \cdot k} \quad (4.2 - 53)$$

Die u.a. von KOLMOGOROV dimensionsanalytisch gewonnene Gleichung 4.1 - 9 (Seite 57) kann mit der Definitionsgleichung für die spezifische kinetische Energie (Gl. 4.1 - 5 [S. 56] bzw. Gl. 4.2 - 53) kombiniert werden. Dabei erhält man die folgende, sog. KOLMOGOROVsche Gleichung [170] für die Länge Λ der großen, energiereichen Wirbel:

$$\Lambda \sim \frac{k^{\frac{3}{2}}}{\epsilon} \quad (4.2 - 54)$$

Diese Größe wird für die PRANDTLsche Mischungslänge ℓ in Gleichung 4.2 - 52 eingesetzt.

Für die turbulente Viskosität μ_t ergibt sich somit die sog. PRANDTL-KOLMOGOROV-Beziehung:

$$\mu_t = C_\mu \cdot \varrho \cdot \frac{k^2}{\epsilon} \quad (4.2 - 55)$$

Hierin ist C_μ eine Proportionalitätskonstante. Sie muß empirisch bestimmt werden; ihr Wert beträgt $C_\mu = 0,09$ ⁹. Mit dieser Gleichung kann also endlich der Impulstransport vollständig formuliert werden, wofür dann *lokal* die Größen k und ϵ bekannt sein müssen (s. dazu den folgenden Abschnitt).

⁹Das später mit der Theorie der Renormalisierungsgruppen aufgestellte RNG- k,ϵ -Modell ermöglichte eine theoretische Bestimmung des Wertes zu $C_\mu = 0,0845$ [95].

4.2.2.5 Andere Dispersionskoeffizienten

Zur Definition des turbulenten Dispersionskoeffizienten \mathcal{D}_t (s. Abschnitte 4.1.5 [S. 64] und 4.2.2.2 [S. 68]) wird eine turbulente SCHMIDTzahl Sc_t definiert [311]:

$$Sc_t = \frac{\mu_t}{\varrho \cdot \mathcal{D}_t} \quad (4.2 - 56)$$

Sie macht \mathcal{D}_t direkt abhängig von der im vorigen Abschnitt zugänglich gemachten turbulenten (oder „Wirbel-“) Viskosität μ_t .

Ganz analog zur SCHMIDTzahl wurde für turbulenzabhängigen Wärmetransport eine entsprechende PRANDTLzahl aufgestellt [311]:

$$Pr_t = \frac{\mu_t \cdot c_p}{\zeta} \quad (4.2 - 57)$$

Diese Größe wurde vielfach experimentell untersucht [38]. Die gefundenen Werte für Pr_t variieren ungefähr zwischen 0,2 und 2,4; fernab von der Wand häufen sie sich knapp unter 1. Für die turbulente SCHMIDTzahl Sc_t kann vollständige Analogie angenommen werden. (Im numerischen Modell der vorliegenden Arbeit wurde der kommerziell empfohlene Wert 0,7 verwendet [95].)

4.2.3 Das k, ϵ -Turbulenzmodell

Mit den gefundenen Beziehungen können Impuls- und Stofftransport nun abhängig von den Turbulenzparametern k und ϵ formuliert werden; die turbulenzabhängigen Parameter in den REYNOLDSSchen Transportgleichungen (Abschnitt 4.2.2.1, auf Seite 68) werden durch diese Größen ausgedrückt.

4.2.3.1 Transportgleichungen

Für eine vollständige Strömungsberechnung ist es notwendig, die Größen k und ϵ an jedem Punkt im Berechnungsgebiet genau zu kennen. Somit müssen auch für diese Größen, wie für die ursprünglichen Unbekannten (Masse und Impuls), Bilanzgleichungen aufgestellt werden.

Transportgleichung für k . Für die (spezifische) kinetische Turbulenzenergie k gilt folgende Bilanzgleichung (vgl. z.B. Gleichung 4.2 - 39, auf Seite 66):

$$\frac{\partial(\varrho \cdot k)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x}(u \cdot \varrho \cdot k) + \frac{\partial}{\partial x} \left(\Gamma_k \cdot \frac{\partial(\varrho \cdot k)}{\partial x} \right) + \varrho \cdot P_k - \varrho \cdot \epsilon \quad (4.2 - 58)$$

Die (volumenbezogene) Produktion P_k kinetischer Turbulenzenergie ist [95]:

$$P_k = \nu_t \cdot \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \cdot \frac{\partial u_i}{\partial x_j} = \tau_{ij} \cdot \vec{\gamma} \quad (4.2 - 59)$$

Wenn die Fluidichte nicht konstant ist, kann Gravitation zusätzliche Turbulenz produzieren; dies soll hier vernachlässigt werden.

Transportgleichung für ϵ . Die Transportgleichung für die Dissipationsrate ϵ der kinetischen Turbulenzenergie enthält mehrere empirische Parameter $C_{\xi\epsilon}$ [327]:

$$\frac{\partial \varrho \cdot \epsilon}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x}(u \cdot \varrho \cdot \epsilon) + \frac{\partial}{\partial x} \left(\Gamma_\epsilon \cdot \frac{\partial(\varrho \cdot \epsilon)}{\partial x} \right) + C_{1\epsilon} \cdot \varrho \cdot \frac{\epsilon}{k} \cdot P_k - C_{2\epsilon} \cdot \varrho \cdot \frac{\epsilon^2}{k} \quad (4.2 - 60)$$

Die Werte der Parameter wurden empirisch bestimmt zu $C_{1\epsilon} = 1,44$ und $C_{2\epsilon} = 1,92$ [169]. Einzelheiten über die Quellen- und Senkenterme wurden u.a. von W. RODI [269, 270] veröffentlicht.

Weitere Dispersionskoeffizienten. Die neuen Transportgleichungen enthalten weitere Dispersionskoeffizienten, Γ_k und Γ_ϵ . Sie haben, wie $\mathcal{D}_t = \Gamma_c$ und $\nu_t = \Gamma_u$, die Einheit $[\Gamma_\Phi] = 1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$. Sie werden folgendermaßen definiert:

$$\Gamma_\Phi = \frac{\nu_t}{\varsigma_\Phi} \quad (4.2 - 61)$$

Der dimensionslose Divisor ς_Φ wird empirisch bestimmt und liegt für alle Größen nahe an **1**: $\varsigma_u \stackrel{!}{=} 1$; $\varsigma_c = \text{Sc}_t = 0,7$; $\varsigma_k = 1,0$; $\varsigma_\epsilon = 1,3$ [170, 169]. Die Zahlen ς_k und ς_ϵ werden (wegen der Analogie zur SCHMIDTzahl) oft als PRANDTLzahlen bezeichnet.

4.2.3.2 Turbulenz in Wandnähe

Turbulenz wird in der Nähe einer Wand von dieser gedämpft; unter mehreren Übergangsbereichen liegt direkt an der Wand ein dünner, laminarer Flüssigkeitsfilm (PRANDTLsche Grenzschicht). Bei der Simulation turbulenter Strömungen muß der Übergang zwischen laminarem Grenzfilm und turbulenter Freifeldströmung beschrieben werden, um den Einfluß der Wand auf die Strömung korrekt einzubeziehen.

Dimensionslose Größen. Zur Beschreibung wandnaher Strömungen wird zunächst in Abhängigkeit von der lokalen Schubspannung τ eine charakteristische Schergeschwindigkeit u^* definiert [299]:

$$u^* = \sqrt{\frac{\tau}{\rho}} \quad (4.2 - 62)$$

Mit dieser charakteristischen Schergeschwindigkeit können nun eine dimensionslose Geschwindigkeit u^+ (entlang der Wand) und eine dimensionslose Ortskoordinate y^+ (senkrecht zur Wand) definiert werden [311]:

$$u^+ = \frac{u}{u^*} \quad (4.2 - 63)$$

$$y^+ = \frac{y \cdot u^*}{\nu} \quad (4.2 - 64)$$

Mit diesen Größen lassen sich nun die Ergebnisse aus eingehenden Untersuchungen wandnaher turbulenter Strömungen beschreiben.

von Karman-Profil. Das Geschwindigkeitsprofil einer turbulenten Strömung in Wandnähe kann auch für einfache Geometrien nur teilweise analytisch hergeleitet werden [84]; der größere Anteil muß empirisch beschrieben werden.

Das sog. VON KARMANSche Geschwindigkeitsprofil zerfällt in verschiedene Bereiche:

- Im Bereich $y^+ < 5$ liegt der laminare Grenzfilm mit dem für ihn gültigen laminaren Schubspannungsgesetz:

$$u^+ = y^+ \quad (4.2 - 65)$$

- Diesem folgt eine Puffer- oder Übergangszone im Bereich $5 \leq y^+ < 30$ [311] oder $5 \leq y^+ \leq 60$ [95]:

$$u^+ = 5 \cdot \ln y^+ - 3 \quad (4.2 - 66)$$

- Nach außen (von der Wand aus) schließt sich der voll turbulente Bereich innerhalb der sog. inneren Wandströmung an. Für ihn gilt das sogenannte „logarithmische Wandgesetz“; es lautet, für $y^+ > 30$ (bzw. $y^+ > 60$):

$$u^+ = 2,5 \cdot \ln y^+ + 5 \quad (4.2 - 67)$$

Die Dicke dieses logarithmischen Bereiches ist bereits von der Geometrie der Wand abhängig; sein äußeres Ende ist das Ende des inneren Teils der Wandströmung.

- Der äußere Teil der Wandströmung stellt den letzten Übergang zur Freifeldströmung dar; seine Form (das Geschwindigkeitsprofil) ist von der Geometrie des Strömungsgebietes abhängig.

Mit diesen Beziehungen ist es möglich, in der numerischen Strömungssimulation einen (empirischen) Übergang vom wandnächsten Berechnungspunkt bis zur Wand herzustellen. Die analytischen Funktionen lassen sich bis zum wandnächsten Berechnungspunkt integrieren, solange dieser im sog. inneren Teil der Wandströmung liegt. Mit dem k,ϵ -Modell ist es auf diesem Wege auch möglich, Wandschubspannungen an den begrenzenden Wänden um eine turbulente Strömung zu berechnen [106, 214].

4.2.3.3 Schwächen des k,ϵ -Modelles

Die Scherkräfte im Schubspannungstensor können eingeteilt werden in lineare und Rotationskomponenten. In Gleichung 4.2 - 59 (Seite 70) führen lineare Scherkräfte grundsätzlich zu Turbulenzproduktion, obwohl sie unter bestimmten Bedingungen statt dessen Turbulenz auslöschten können [95]. Dies führt zu einer Überschätzung der Turbulenzproduktion durch das k,ϵ -Modell; diese wirkt sich besonders dort aus, wo große positive oder negative *Beschleunigungen* wirken.

Wenn z.B. eine freie, lineare Strömung ein relativ kleines Hindernis umströmt, kommt es dahinter häufig zur Bildung und Ablösung makroskopischer Wirbel (VON KARMANSche Wirbelstraße). Diese Wirbel fehlen sehr oft in entsprechenden Simulationsrechnungen mit dem k,ϵ -Modell, weil die im Übermaß vorausgesagte Turbulenz solche Phänomene ausdämpft, bevor sie sich voll ausbilden können. Dies geschieht, weil hier (bei Stromlinienkrümmung und Wirbelbildung) die turbulente Wirbelviskosität vom Modell zu hoch vorausgesagt wird [138].

4.2.4 Andere Turbulenzmodelle

In der Literatur über die Strömungssimulation in Rührkesseln werden verschiedene Alternativen zum k,ϵ -Turbulenzmodell beschrieben, die im folgenden kurz genannt und eingeordnet werden sollen.

4.2.4.1 Modifizierte k,ϵ -Modelle

In Abschnitt 4.2.3.3 wurden Einschränkungen in der Anwendbarkeit des beschriebenen k,ϵ -Turbulenzmodells erwähnt. Diese beziehen sich vor allem auf minderturbulente Strömungen, in denen das Modell zu hohe Turbulenzgrade und zu starke Dämpfung mesoskopischer Strömungsphänomene vorhersagt. Außerdem unterliegt das k,ϵ -Modell der inhärenten Limitierung durch die in der BOUSSINESQ-Hypothese festgelegte Annahme *isotroper Turbulenz*.

Dämpfungs faktoren. Um das k,ϵ -Modell für schwachturbulente Strömungen, auch im Übergangsbereich zur Laminarität, verwendbar zu machen, wurden verschiedene Modifikationen vorgeschlagen. Diese bestehen z.B. in einem Faktor $f_\mu \in [0; 1]$ in der Gleichung 4.2 - 55 (Seite 69) für

die turbulente Wirbelviskosität μ_t . Dieser Faktor wird abhängig von der Wandnähe [84] (s. Abschnitt 4.2.3.2, auf Seite 71) oder von einer speziellen turbulenten REYNOLDSzahl $Re_{\tilde{\epsilon}} = \frac{k^2}{\nu \cdot \tilde{\epsilon}}$ ausgedrückt [169]. Hierbei ist $\tilde{\epsilon}$ der nach spezieller Definition berechnete *isotrope Anteil* der Energiedissipation ϵ . Entsprechende Anpassungsterme werden auch in der Bilanzgleichung für die (spezifische) Energiedissipation ϵ eingeführt.

Zusätzlicher Term. Das Standard- k, ϵ -Modell sagt mit Gleichung 4.2 - 55 (Seite 69) u.U. zu hohe Wirbelviskositäten voraus. CHEN und KIM schlugen deswegen 1987 einen zusätzlichen Quellterm in der Transportgleichung 4.2 - 60 (Seite 70) für die Energiedissipationsrate ϵ vor [138]: $+ C_{3\epsilon} \cdot \varrho \cdot \frac{1}{k} \cdot P_k^2$. Dieser erhöht die Dissipationsrate, was sowohl zu einem schnelleren Abbau der Turbulenz als auch zu niedrigerer Wirbelviskosität führt. Dieses Modell zeigte Vorteile bei der Rührersimulation mit einem Rührer-Ersatz-Modell [139, 140] (vgl. Abschnitt 3.3.3.1, auf Seite 42).¹⁰

Anisotropie-Term. JU *et al.* (1990) führten eine gewisse *Anisotropie* in das k, ϵ -Modell ein [143]: Sie machten die turbulenzabhängigen Dispersionskoeffizienten (Wirbelviskosität sowie turbulente SCHMIDT- und PRANDTLzahl) im Ausstrombereich eines Rührers richtungsabhängig. Auch dieser Weg wurde zur Verbesserung einer Simulation mit Rührer-Ersatz-Modell verwendet (vgl. hierzu Abschnitt 3.3.3, auf Seite 42); er diente also u.U. nur dem Auskorrigieren von Pseudoturbulenz in den Rührer-Randbedingungen (s. Abschnitt 4.1.1.2, auf Seite 55).

4.2.4.2 Anisotrope Turbulenzmodelle

Alle bisher vorgestellten Turbulenzmodelle basieren auf der BOUSSINESQ-Hypothese (Abschnitt 4.2.2.2, auf Seite 68). Diese beinhaltet die Annahme, daß Scherung $\dot{\gamma}$ und Schubspannung τ im turbulenten Strömungsfeld immer dieselbe Richtung haben. Anders ausgedrückt hat an einem Punkt im Raum die turbulente Wirbelviskosität μ_t grundsätzlich denselben Wert in allen Wirkrichtungen.

“Reynolds-stress-model” Diese Annahme von Isotropie ist aber z.B. in wandnahen oder stark in sich rotierenden (torquierten) Strömungen nicht haltbar. Die kinetische Turbulenzenergie k muß in Komponenten der einzelnen Raumrichtungen (lineare und Rotationskomponenten) aufgegliedert werden. Der Tensor der REYNOLDSSchen Schubspannungen ist ein *symmetrischer* Tensor; insgesamt sind also sechs einzelne Komponenten der kinetischen Turbulenzenergie zu bilanzieren. Hinzu kommt die Bilanzgleichung für die spezifische Energiedissipation ϵ .

Insgesamt sind mit dem REYNOLDS-stress-model also sieben Bilanzgleichungen zu lösen statt, wie mit dem k, ϵ -Modell, lediglich zwei [62]. Das macht seine Anwendung sehr rechenzeitaufwendig.

“algebraic stress model” Um dem extremen numerischen Aufwand des REYNOLDS-stress-model zu entgehen, wurde versucht, die Anisotropie anderweitig in das k, ϵ -Turbulenz-Modell einzubinden [105]. Hierbei wird die Annahme zu Grunde gelegt, daß die charakterisierende Richtung im anisotropen dispersiven Impulstransport die Richtung des lokalen Gradienten der spezifischen kinetischen Turbulenzenergie k ist.

Auf dieser Grundlage wurden auch weitere, sog. „nichtlineare“ k, ℓ - und k, ϵ -Turbulenz-Modelle entwickelt [298]. („ ℓ “ steht für die PRANDTLsche Mischungslänge, eine gelegentlich statt der turbulenten kinetischen Energie verwendete Modellgröße in Zweigleichungsturbulenzmodellen.)

¹⁰Dies bedeutet nicht unbedingt, daß dieses modifizierte Turbulenzmodell grundsätzlich dem Standard- k, ϵ -Modell überlegen ist, solange die Eingabedaten für das verwendete Rührer-Ersatz-Modell nicht über jeden Zweifel erhaben sind.

4.2.4.3 Direkte Turbulenzsimulation, DNS & LES

Modernste Hochleistungsrechner öffnen neue Wege der Turbulenzmodellierung. Hier wird Turbulenz nicht mehr in phänomenologischen Gleichungen formuliert, sondern direkt von der diskreten Formulierung des numerischen Modells aufgelöst. (Vgl. auch Abschnitt 4.2.2 [S. 67].)

Direkte numerische Simulation. Theoretisch ist es denkbar, die unregelmäßigen Anteile der Strömung, aus denen Turbulenz besteht, in instationärer, räumlich hochauflösender Strömungssimulation direkt zu simulieren (DNS, direkte numerische Simulation). Gleichungen 4.1 - 15 und 4.1 - 16 in Abschnitt 4.1.2.2 auf Seite 57 zeigen, daß bei sehr *kleinen* Energiedissipationsraten (also auch Leistungseinträgen) relativ *große* Werte für die Größe und Zeitkonstante der *kleinsten* vorkommenden Wirbel resultieren.

In schwach turbulenten Strömungen, und vor allem in solchen im Übergangsbereich zwischen Laminarität und Turbulenz, ist es also mit einer endlichen Anzahl von Gitterzellen (s.u., Abschnitt 4.2.5.2, auf Seite 77) und Zeitschritten möglich, die Turbulenzwirbel tatsächlich direkt zu beschreiben. Besonders in diesen Bereichen haben gewöhnliche Turbulenzmodelle nur beschränkte Gültigkeit, so daß diese Alternative zunehmend an Bedeutung gewinnen wird.

“large eddy simulation”. Für höberturbulente Strömungen setzt die Kleinheit und Schnelligkeit der Turbulenzwirbel nach wie vor unberührbare Grenzen. Hier kann es aber trotzdem von großem Interesse sein, wenigstens bis hinab zu einer bestimmten Auflösung die Turbulenzwirbel direkt zu modellieren. Mit (mathematisch formulierten) spektralen Filtern ist es möglich, die Wirkung eines k,ϵ -Turbulenzmodells auf kleine Wirbel unterhalb einer charakteristischen Länge zu beschränken. Größere Wirbel entwickeln sich dann in einem hinreichend feinen Diskretisationsgitter in Form direkter numerischer Simulation.

Diese Methode erfordert ein hohes, aber sinnvoll begrenzbares Maß an Rechenaufwand und Arbeitsspeicher. Sie bietet die vorteilhafte Möglichkeit, die mehr oder minder *anisotropen* Turbulenzanteile kleiner Wellenzahl (große Wirbel) direkt (numerisch) zu simulieren. So können bedeutende Unsicherheiten in den Simulationen ausgeräumt werden; auf die Kleinwirbelbereiche (höhere Wellenzahlen) sind die (Isotropie annehmenden) Turbulenzmodelle wesentlich zuverlässiger anzuwenden.

DNS und *LES* sind im Moment weitgehend auf spezielle Turbulenzuntersuchungen im Forschungsbereich beschränkt; zur zukünftigen Untersuchung der hypothetischen Anisotropie an Rührerblättern erscheinen solche Methoden aber sehr empfehlenswert. Im Bereich direkter numerischer Turbulenzsimulation kann die Methode der “*lattice gas automata*” ihre Vorteile entfalten [76] (vgl. auch Abschnitt 4.2.5.2 [S. 79]). Abbildung 4.3 zeigt das Beispiel einer Momentaufnahme aus einer solchen Simulationsrechnung [87].

4.2.5 Numerische Behandlung

Die aufgestellten *Differentialgleichungen* (NAVIER-STOKES-Gleichungen) sind so komplex und zudem miteinander gekoppelt, daß eine analytische Lösung höchstens in extrem einfachen Geometrien möglich ist. Im Normalfall ist nur eine numerische Behandlung der zu diesem Zweck *linearisierten* und (räumlich wie zeitlich) *diskretisierten* Gleichungen möglich. Diese soll im folgenden kurz beschrieben werden.

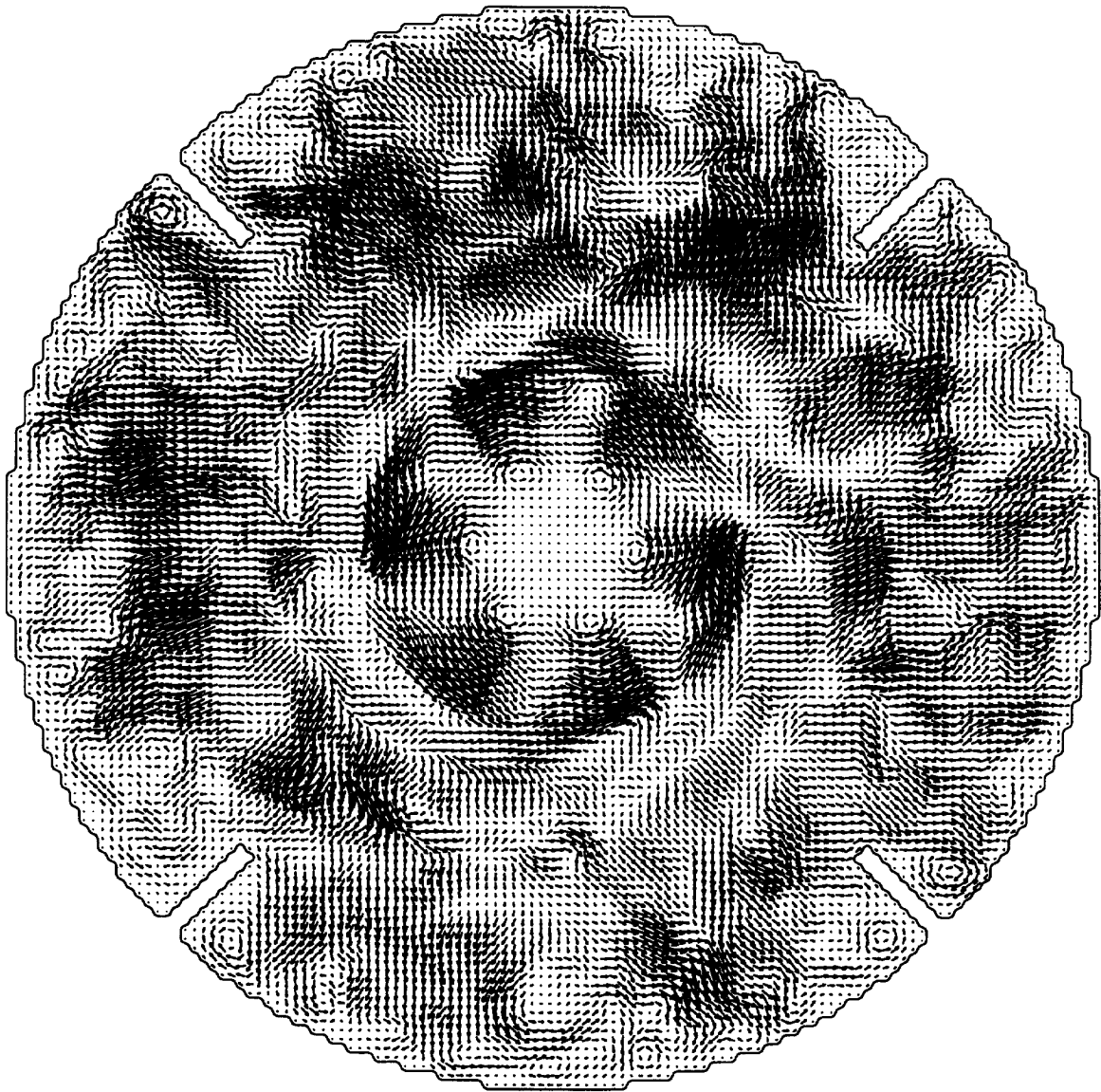


Abbildung 4.3: Beispiel für eine Momentaufnahme aus einer large-eddy-Simulation [87]. Es ist der horizontale Querschnitt durch einen Rührkessel mit vier Strömungsbrechern und Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer zu sehen (Schnitt genau in der Rührerebene).

4.2.5.1 Randbedingungen

Zur Lösung der Differentialgleichungen müssen grundsätzlich *Randbedingungen* an allen Begrenzungen des Berechnungsgebietes definiert werden. (Zusätzlich können, z.B. in Form des Rührer-Ersatz-Modelles, auch „Randbedingungen“ im Inneren des Simulationsgebietes eingesetzt werden; vgl. hierzu Abschnitt 3.3.3 [S. 42].)

Wandhaftbedingung. Direkt an jeder (feststehenden) Wand gilt die sogenannte *Haftbedingung*; das bedeutet, daß die Geschwindigkeit des Fluides in allen drei Raumrichtungen gleich null sein muß. Am ersten Berechnungspunkt in Wandnähe kann Bewegung parallel zur Wand auftreten. Zwischen der Wand und diesem ersten Berechnungspunkt wird in laminarer Strömung ein lineares Schergefälle angenommen; in turbulenter Strömung gilt das VON KARMANSche Geschwindigkeitsprofil (s. Abschnitt 4.2.3.2, auf Seite 71). Wenn sich eine Wand im Berechnungsgebiet *bewegt*, so gilt deren Geschwindigkeit genau als die Randbedingung für das strömende Fluid in unmittelbarer Wandnähe.

Freie Oberfläche. Eine freie Flüssigkeitsoberfläche wird bei Rührkesselsimulationen zumeist als ebene Grenzfläche aufgefaßt. Hier herrscht aber keine Haftbedingung wie an Wänden. Für Komponenten der Strömungsgeschwindigkeit *entlang* dieser Fläche wird statt dessen vorgegeben, daß die *Steigung* des Geschwindigkeitsprofils null sein muß (Gradientenfreiheit). Dies erzwingt die Logik, weil keinerlei Scherkräfte solche Geschwindigkeitsgradienten verursachen könnten. Lediglich in Richtung *normal* (orthogonal) zur Wand muß die Geschwindigkeit weiterhin gleich null sein.

Skalare Größen. Viele weitere skalare Größen werden bei der numerischen Strömungssimulation behandelt; dies sind z.B. Druck, Temperatur und Massenanteile (Konzentrationen) chemischer Komponenten in einer Mischung.

Für viele dieser skalaren Größen gilt an allen *Wänden* sinngemäß dasselbe wie für die Tangentialgeschwindigkeit an der freien Oberfläche: Da keine Einflüsse aus der Wand heraus auf diese skalaren Größen wirken können, müssen die Steigungen der *Gradienten* dieser skalaren Größen direkt an der Wand gleich *null* sein.

Austauschvorgänge (Wärmeübergang an Wänden, Stoffübergang an der freien Oberfläche) führen zu anderen Randbedingungstypen, bei denen mehr oder weniger feste Zahlenwerte für die skalare Größe am Rande des Rechengebietes vorgegeben werden.

Turbulenzgrößen. Es verbleiben, als zusätzliche skalare Größen, die Turbulenzgrößen k und ϵ . Für sie gelten teilweise spezielle Randbedingungen:

Für die (spezifische) kinetische Turbulenzenergie k gilt, wie für andere Skalare, Gradientenfreiheit an der Wand. Für die (spezifische) Produktionsrate P_k der kinetischen Turbulenzenergie (Gleichung 4.2 - 59 auf Seite 70) wird in direkter Wandnähe *Gleichgewicht* mit der spezifischen Energiedissipationsrate ϵ angenommen [170]. So ergibt sich die Randbedingung der einen Gleichung aus der Lösung der anderen; diese besondere Kopplung stellt besondere Anforderungen an den numerischen Löser.

4.2.5.2 Finite-Volumen-Methode

Zur numerischen Lösung von Differentialgleichungen und -gleichungssystemen müssen diese (linearisiert und) *diskretisiert* werden. Dazu existieren verschiedene Methoden, von denen vor allem die *Finite-Elemente-* und die *Finite-Volumen-Methode* regelmäßig verwendet werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die *Finite-Volumen-Methode* eingesetzt: Das gesamte Berechnungsgebiet wird in eine endliche Anzahl kleiner Kontrollvolumina unterteilt. In jedem dieser Volumenelemente werden die Differentialgleichungen durch einfache *Bilanzen* zu- und abgehender Flüsse der physikalischen Erhaltungsgrößen (Masse und Impuls) approximiert. Für die Berechnung werden die Größen jeweils für die räumliche Position des Zentrums (Schwerpunktes) eines jeden Kontrollvolumens gespeichert [241, 95]. Da für jedes einzelne Kontrollvolumen Bilanzen aufgestellt und Erhaltungssätze durch den Löser erzwungen werden, müssen diese in der globalen Lösung ebenfalls erfüllt sein. Diese Eigenschaft zeichnet die *Finite-Volumen-Methode* gegenüber anderen Verfahren aus.

Diskretisierungsgitter. Für die Finite-Volumen-Methode muß das Berechnungsvolumen in eine endliche Anzahl definierter Kontrollvolumina eingeteilt werden. In der Anfangszeit der numerischen Strömungssimulation bestanden die Gitter ausschließlich aus quadratischen bzw. würfelförmigen Gitterzellen; schräge und gekrümmte Berandungen des Rechengebietes mußten durch Treppen angenähert werden, indem einzelne Zellen entfernt und durch entsprechende Randbedingungen ersetzt wurden. In diesen einfachen Gittern ergab sich die räumliche Position einer Zelle eindeutig aus Gitterschrittweite und Zellindizierung; die Nachbarschaftsverhältnisse zueinander waren klar strukturiert, was die Programmierung effizienter Löser ermöglichte.

Randangepaßte Gitter. Später wurden, zur genaueren Abbildung der realen Geometrie in die numerische Simulation, die Gitterlinien an die vorgegebenen Verläufe der Ränder des Strömungsgebietes angepaßt. Damit wurde es nötig, Position, Form und Größe einer jeden Gitterzelle separat zu speichern und bei der Bilanzierung (Lösung der NAVIER-STOKES-Gleichungen zu berücksichtigen. Dementsprechend stieg der Aufwand für Programmierung und Ausführung der Berechnungen. Damit wurde aber eine wesentlich *genauere* numerische Strömungssimulation möglich.

Topologische Struktur. Lange Zeit besaßen die variabel geformten Netze immer noch die *Topologie* (d.h. die logischen Verknüpfungen und Nachbarschaftsverhältnisse der Zellen untereinander) von einfachen Vierecks- (zweidimensional) bzw. Würfelgittern (dreidimensional). Dies machte die Erzeugung solcher Gitter in komplizierten Geometrien äußerst umständlich. (*Jede Gitterlinie mußte genau von einer der sechs [topologischen] Seiten des Rechengebietes bis zur „gegenüberliegenden“ Seite durchgehen.*) Viele Geometrien (z.B. eine Kugel) ließen sich nur mit stark verzerrten Gitterzellen „vernetzen“, was die Geschwindigkeit und Genauigkeit der Simulationen beeinträchtigte.

Unstrukturierte Gitter. Aus der numerischen Strukturmechanik mit der *Finite-Elemente-Methode* sind seit langem Netze aus Dreiecken (zweidimensional) bzw. Tetraedern (dreidimensional) bekannt. Mit solchen Gittern lassen sich *vollautomatisch* beliebige Geometrien „vernetzen“, d.h. in eine Anzahl finiter Kontrollvolumina diskretisieren. Mittlerweile existieren leistungsfähige Löser für die numerische Strömungssimulation (nach der *Finite-Volumen-Methode*) in solchen vollautomatisch generierten Gittern [96].

Interpolation. Bei der *Finite-Volumen-Methode* werden *Flüsse* bilanziert, die durch die Grenzflächen eines Kontrollvolumens in dieses hinein oder aus ihm heraus treten. Dafür müssen z.B. die Geschwindigkeiten und Konzentrationen bekannt sein, die genau am Ort dieser Grenzflächen

herrschen. Andererseits ergibt die *Finite-Volumen-Methode* aber nur Ergebnisse für ganze Gitterzellen, so daß die Werte räumlich den *Zellmittelpunkten* zugeordnet werden. Die Werte, die am Ort der Grenzflächen zwischen den Zellen herrschen, müssen durch *Interpolation* zwischen den Zellmittelpunkten ermittelt werden.

Diese Interpolation orientiert sich vorrangig daran, aus welcher Richtung die Strömung kommt. In der einfachsten Form werden immer die Werte aus der jeweils *stromaufwärts* gelegenen Zelle verwendet. Genauere Verfahren interpolieren über mehrere stromaufwärts gelegene Zellen oder beziehen auch die erste stromabwärts der betrachteten Zellgrenze gelegene Zelle mit ein.

Die Interpolation besitzt nur eine begrenzte Genauigkeit. besonders wenn die Strömung in *schrägem Winkel* zu den Gitternetzlinien verläuft (was bei Dreiecks- bzw. Tetraedergittern vielerorts unvermeidbar ist), führt die Interpolation zu einem gewissen „*Versmieren*“ der auftretenden Gradienten. Diese Wirkung entspricht einem erhöhten Diffusionskoeffizienten (Viskosität) und heißt deswegen „numerische Diffusion“. Bei der Simulation *turbulenter* Strömungen ist dieser Artefakt aber in aller Regel vernachlässigbar gegenüber den durch die Turbulenz intensivierten realen Diffusionsvorgängen.¹¹

Variablenkopplung Bei der Lösung der aufgestellten Differentialgleichungen stellt sich ein Problem: In den Impulsgleichungen ist der *Druck* als Einflußgröße enthalten (letzter Term in Gleichung 4.2 - 42, auf Seite 67). Für ihn kann aber keine eigene Erhaltungsgleichung aufgestellt werden, so daß er nicht direkt aus dem Gleichungssystem zu errechnen ist [62].

Das Druckfeld als Teil eines Simulationsergebnisses kann sich also nur implizit daraus ergeben, daß die Geschwindigkeiten gleichzeitig ihre eigenen Transportgleichungen (4.2 - 42) und die Kontinuitätsgleichung (Gl. 4.2 - 40, auf Seite 66) erfüllen müssen. Die räumliche Verteilung des Druckes im Berechnungsgebiet kann somit nicht unmittelbar *berechnet* werden; sie kann nur *geschätzt* und durch einen Optimierungsalgorithmus angenähert werden, der die Erfüllung der Kontinuitätsgleichung anstrebt.

SIMPLE-Algorithmus. Dafür existiert eine Familie von speziellen, iterativen Algorithmen, die *semi-implicit methods for pressure linked equations* [112]: Zu Anfang werden die Transportgleichungen für die Impulskomponenten gelöst; für den Druck werden dabei einfache Schätzwerte (oder einfach null) eingesetzt. Die resultierenden Geschwindigkeiten erfüllen die Impulsgleichungen, aber nicht die Kontinuitätsgleichung.

Daraufhin werden *Korrekturterme* berechnet, mit denen die Druckwerte zu korrigieren sind. Die erhaltenen Schätzwerte werden dann als Druckwerte in einer neuen Iteration verwendet, in der wiederum die Transportgleichungen für die Impulskomponenten gelöst werden. So kann iterativ eine exakte Lösung gefunden werden. (Es läßt sich zeigen, daß der verbleibende Fehler im Laufe der Iterationen gegen null gehen muß [62].)

Alternative Verfahren. Die *Finite-Volumen-Methode* ist nicht die einzige Möglichkeit, numerische Strömungssimulation auszuführen. Aus der Strukturmechanik ist die *Finite-Elemente-Methode* für numerische Simulationen bekannt. Auch sie wird regelmäßig für die numerische Strömungssimulation eingesetzt. Sie produziert sehr genaue Ergebnisse, ist aber numerisch aufwendig und in der Handhabung diffizil. Verglichen mit der *Finite-Volumen-Methode* ist sie weniger

¹¹Bei *laminaren* Strömungen kann die „numerische Diffusion“ hingegen nennenswerte Störungen verursachen. Hier ist die Verwendung der (diffizileren) *Finite-Elemente-Methode* zu erwägen, die auf eine effiziente Minimierung der numerischen Diffusion hin optimiert werden kann.

robust und nicht in der Lage, Diskontinuitäten im Lösungsfeld zu verarbeiten. Aus diesen Gründen wird sie in der numerischen Strömungssimulation nur für Spezialanwendungen verwendet.

Eine relativ neue Entwicklung sind die sog. *lattice gas automata* [36] und die *lattice-BOLTZMANN*-Methoden [87] zur Strömungssimulation. Sie eignen sich besonders für hochauflösende Simulationen ohne aufwendige Turbulenzmodelle, wie z.B. bei *“large eddy”*-Simulation. Dies wurde auch bereits auf Rührkesselreaktoren angewendet [76, 87] (vgl. auch das Ende von Abschnitt 4.2.4.3, auf Seite 74).

4.2.6 Zusammenfassung

Dieser Abschnitt (4.2) hat einen kurzen Überblick über die theoretischen Grundlagen der in dieser Arbeit verwendeten numerischen Strömungssimulation gegeben. Nach den essentiellen Differentialgleichungen zur mathematischen Beschreibung aller Strömungsvorgänge (NAVIER-STOKES-Gleichungen) wurde die Berücksichtigung von Turbulenz über ein spezielles Turbulenzmodell und besondere Terme in den allgemeinen Differentialgleichungen erklärt. Weiterhin wurden das Aufstellen von Randbedingungen und schließlich die gesamte numerische Behandlung der aufgestellten Gleichungen nach der *Finite-Volumen-Methode* beschrieben.

4.3 Mehrphasenströmungen

Im begasten Rührkessel strömen mehrere Phasen gleichzeitig (disperse Gasphase [Blasen] und kontinuierliche Flüssigkeit). Für solche Mehrphasenströmungen existieren verschiedene Simulationsmethoden, die im folgenden kurz vorgestellt werden; es wird dann eine Methode für das später zu entwickelnde Modell ausgewählt und beschrieben.

4.3.1 Grundeinteilung

Zur Beschreibung von Strömungen gibt es zwei verschiedene Grundideen: Zum einen kann man ortsfeste Bilanzvolumina einführen und Ströme der Erhaltungsgrößen zwischen diesen Bilanzvolumina berechnen, wie dies im vorigen Abschnitt (4.2) für einphasige Strömungen beschrieben wurde. Diese Betrachtungsweise wird nach EULER benannt.

Die andere Art der Strömungsbeschreibung betrachtet die Bewegung einzelner Fluidelemente im Strömungsgebiet [24] (Flüssigkeitspakete, Partikeln, Moleküle, oder reine „Ersatzpartikeln“ wie im *lattice gas*-Verfahren [s. Abschnitt 4.2.5.2]). In kleinen Zeitschritten werden alle auf das Fluidelement oder die Partikel wirkenden Kräfte integriert, und so wird die Bahn des betrachteten Massepunktes berechnet. Diese Beschreibungsart ist allgemein mit dem Namen LAGRANGE verbunden.

Modelle für Zweiphasenströmungen funktionieren dementsprechend nach zwei unterschiedlichen Strategien:

1. Beide Phasen werden als (einander durchdringende) Kontinua betrachtet und nach EULER beschrieben; Kennzeichen dieser sog. EULER/EULER-Modelle ist die Berechnung lokaler Phasenvolumenanteile ε_p .
2. Die kontinuierliche Phase wird nach EULER aufgefaßt, während die disperse Phase in Form diskreter Partikeln nach LAGRANGE beschrieben wird. Solche EULER/LAGRANGE-Modelle bieten sich dort an, wo bereits eine Phase in Form diskreter Partikeln vorliegt.

Mehrphasenströmungen von dispersen Gasblasen in flüssigkeitserfüllten (Bio-) Reaktoren wurden bisher größtenteils nach der EULER/EULER-Methode simuliert (vgl. Abschnitt 3.4.1, auf Seite 47).

4.3.2 Kontinuumsmodelle

Die Beschreibung von Mehrphasenströmungen nach dem EULER/EULER-Ansatz hat verschiedene Varianten:

4.3.2.1 Phasenanteil-Modell

Die einfachste Methode, Mehrphasenströmungen zu simulieren, führt lediglich als zusätzliche skalare Modellgröße den Volumenanteil der sekundären Phase ein. (Eine bestimmte Formulierung dieses Modells ist unter der Abkürzung „VOF“ für [engl.] *“volume of fluid”* bekannt.) Für jede Phase ergibt sich eine eigene Kontinuitätsgleichung. Alle Phasen werden aber von denselben Impulstransportgleichungen beschrieben, sie teilen sich also ein gemeinsames Geschwindigkeitsfeld. Die Summe der Volumenanteile der Phasen muß 1 ergeben.

Dieses Modell versagt, wenn die Phasen ineinander verteilt (dispergiert) sind und Trägheits- oder Schwerkkräfte eine relative Geschwindigkeit zwischen ihnen verursachen (Sedimentation oder Blasenauftieg). Es ist aber gut geeignet, in transienten Strömungen die Lage und Bewegung einer großräumigen Phasengrenze zwischen Flüssigkeit und Gas zu beschreiben. So konnte z.B. die (zeitabhängige) Form der freien Flüssigkeitsoberfläche in einem Rührkessel modelliert werden. Außerdem wurde in hoher räumlicher Auflösung die Strömung in unmittelbarer Nähe einer Gasblase untersucht [73].

4.3.2.2 Algebraisches Schlupf-Modell

Bei dispersen Mehrphasenströmungen können Dichteunterschiede lokal oder (unter Schwerkrafteinwirkung) global zu einer Relativbewegung zwischen den Phasen führen. Dies muß für eine zuverlässige Simulation der Mehrphasenströmung berücksichtigt werden.

Ein einfaches Verfahren dieser Art ist, *ein* Geschwindigkeitsfeld für beide Phasen gemeinsam zu berechnen und zusätzlich die relative Bewegung der einzelnen Phasen gegenüber diesem „Mittelwert“ aus *algebraischen Gleichungen* zu ermitteln. Hierzu wird zunächst eine *Relaxationszeit* der Partikelbeschleunigung formuliert [190]:

$$\tau_{rp} = \frac{\rho_p \cdot d_p^2}{18 \cdot \mu} \quad (4.3 - 68)$$

Die Schlupfgeschwindigkeit v_{ps} ist dann das Produkt aus der Beschleunigung a_p (durch Trägheit [Fliehkraft], Schwere oder Auftrieb) und der Relaxationszeit τ_{rp} : $v_{ps} = a_p \cdot \tau_{rp}$.

Das beschriebene Modell ist genau dann in der Lage, gute Voraussagen über disperse Mehrphasenströmungen zu produzieren, wenn die Partikelrelaxationszeit hinreichend *klein* ist gegenüber der Verweilzeit der kontinuierlichen Phase im betrachteten Strömungsgebiet. Dies ist gültig sowohl für sehr *kleine* Partikel (Staub) als auch für sehr *leichte* Partikel, wie z.B. *Gasblasen*.

4.3.2.3 Echtes Euler/Euler-Modell

In den beiden vorangegangenen Abschnitten wurde eigentlich eine *vereinfachte* Version des *vollständigen* EULER/EULER-Modells dargestellt. In letzterem wird, im Gegensatz zu den Vereinfachungen, für jede Phase ein *eigener* Satz von *Transportgleichungen* für Masse und Impuls

gelöst [296]. Die Kopplung zwischen den Phasen existiert durch das gemeinsame Druckfeld, die Gesamtkontinuität (Summe aller Volumenanteile gleich 1) und durch Impulsaustausch zwischen den Phasen.

Dieses Modell ist sehr vielseitig und kann an diverse Strömungsprobleme angepaßt werden. Schwammartig miteinander vermischte Kontinua (z.B. strömender Naßdampf) können ebenso modelliert werden wie disperse Mehrphasenströmungen von Blasen, Tropfen oder Partikeln in einem beliebigen Kontinuum. Im letzteren Fall können Terme für die Viskositätsveränderung in der kontinuierlichen Phasen aus der kinetischen Gastheorie abgeleitet werden; nur der Impulsaustausch zwischen den Phasen muß empirisch beschrieben werden.

Schwächen der Euler/Euler-Methode. Wegen der hohen Anzahl von Freiheitsgraden sind echte EULER/EULER-Methoden numerisch weniger leicht zu handhaben als einphasige Simulationsrechnungen. Die Konvergenz der iterativ ablaufenden Berechnungen ist oft langsamer und weniger robust. Dies macht insbesondere die Simulation instationärer Strömungen zeitaufwendig.

Weiterhin läßt sich eine veränderliche Partikel- bzw. Blasengröße, oder gar -größenverteilung, nur unter besonderem zusätzlichem Rechenaufwand realisieren. Und auch eine (lokale) Verteilung der Zusammensetzung der dispersen Phase wäre nur über eine weitere Erhöhung des numerischen Aufwandes zu erreichen. U.a. aus diesen Gründen wurde für das in dieser Arbeit entwickelte Modell die im folgenden beschriebene EULER/LAGRANGE-Methode gewählt.

4.3.3 Die Euler/Lagrange-Methode

Wenn in einer Mehrphasenströmung eine Phase in Form diskreter Partikeln vorliegt, bietet es sich an, auf diese die LAGRANGESche Beschreibung anzuwenden. Wenn die Partikeln außerdem nur eine klar begrenzte Verweilzeit im Berechnungsgebiet haben, läßt sich hier die EULER/LAGRANGE-Methode anwenden. Damit läßt sich die Mehrphasen-Strömungs-Simulation erheblich einfacher und robuster gestalten.

Die genannten Bedingungen sind, außer in begasten Rührkesseln, z.B. auch in Blasensäulen erfüllt; für diese einfachen Apparate wurde die EULER/LAGRANGE-Methode bereits oft und erfolgreich eingesetzt [73, 75, 74, 294].¹²

4.3.3.1 Das Prinzip

Zunächst wird das Strömungsfeld der kontinuierlichen Phase allein berechnet, wie in Abschnitt 4.2.5 auf Seite 74 beschrieben. Dann „friert“ man dieses Strömungsfeld vorübergehend ein und injiziert an einer realistischen Stelle eine Partikel. Auf diese Partikel wirken verschiedene Kräfte; diese werden in kleinen Zeitschritten integriert, und es läßt sich so eine beliebig fein diskretisierbare Trajektorie der Partikel durch das Berechnungsgebiet bestimmen.

Wenn man die Partikel von verschiedenen Positionen aus injiziert (verschiedene Löcher eines Ringbegasers), so ergeben sich jeweils unterschiedliche Trajektorien. Außerdem kann der stochastische Einfluß der Turbulenz in die Trajektorienberechnung einbezogen werden. Mit Hilfe eines Pseudozufallszahlengenerators lassen sich so für dieselbe Injektionsposition und -bedingungen viele verschiedene Partikelbahnen berechnen. Abbildung 4.4 (Seite 83) zeigt beispielhaft eine Schar solcher Trajektorien in einer (frei gewählten) Rührer/Reaktorgeometrie. Zur Anwendung des Modells

¹²Die zitierten Untersuchungen enthalten die, auch für die vorliegende Arbeit relevante, Annahme, daß die Blasenauftiegs geschwindigkeit von der herrschenden Turbulenz in der Flüssigkeit *unabhängig* ist. Eine rein numerische Untersuchung des Aufstiegs sehr kleiner Blasen in direkt simulierter Turbulenz kam zu einem differenzierteren Ergebnis. Hohe kinetische (spezifische) Turbulenzenergien senken die Aufstiegs geschwindigkeit von Blasen in turbulenter Flüssigkeit um bis zu ca. 50% [297].

werden regelmäßig so viele Trajektorien gerechnet, daß sie die räumliche Verteilung der dispersen Gasphase im Reaktor realistisch widerspiegeln.

Während der Berechnung einer einzelnen Partikelbahn können auch Impuls- und Stoffaustausch zwischen Partikel und kontinuierlicher Phase berechnet werden. Für die Partikel werden die Auswirkungen dieser Austauschvorgänge direkt in die Trajektorienberechnung einbezogen. Für die kontinuierliche Phase werden die Austauschterme in jeder Gitterzelle über alle hindurchgehenden Partikeltrajektorien aufsummiert. (Mit jeder Trajektorie ist hierfür im Modell ein gewisser *Massenstrom* verknüpft.)

Nachdem eine ausreichende Anzahl von Trajektorien berechnet und die berechneten Austauschterme gespeichert worden sind, kann die Strömungsberechnung für die kontinuierliche Phase fortgesetzt werden. Hier gehen nun die summierten Austauschterme als Quellen und Senken ein und bewirken eine veränderte Lösung. Mehrere einander abwechselnde Phasen von Trajektorien- und Kontinuums-Strömungs-Berechnung führen schließlich zu einer immer weiteren Annäherung an die wahre Lösung für die gekoppelte Mehrphasenströmung.

4.3.3.2 Kräftebilanz

Zur Berechnung der Partikelbahn werden in vielen Zeitschritten jeweils sämtliche auf die Partikel wirkenden Kräfte aufsummiert, um dann mit der Partikelmasse deren Beschleunigung im neuen Zeitschritt zu bestimmen.

Einige vorkommende Kräfte sind:

- Schwerkraft, bzw. Auftrieb;
- Widerstandskraft bei der Partikelumströmung;
- Massenträgheit der Partikel (bei jeglicher Beschleunigung);
- [in rotierenden Bezugssystemen:] Zentrifugal- und Corioliskraft;
- Massenträgheit einer gewissen, an der Partikel anhaftenden Menge der kontinuierlichen Phase (ebenfalls bei Beschleunigung; “*virtual added mass force*”);
- Kräfte aus Druckgradienten in der kontinuierlichen Phase;
- SAFFMANNsche Kraft (“*lift force*”) in Schergradienten [299];
- MAGNUSSche Kraft (“*lift force*”) bei Partikeleigenrotation [299];
- Thermophorese (Partikel-Wärmebewegung);
- Strahlungskräfte;
- “BASSET *history force*” [68].

Widerstandskraft Eine hinreichend kleine Partikel wird im freien Fall in einem Fluid laminar umströmt. Es gilt das STOKESSche Gesetz für die Widerstandskraft ihrer Umströmung [148] (vgl. Abschnitt 2.3.1.1, auf Seite 22)¹³:

$$F_w = 6 \cdot \pi \cdot \mu \cdot r \cdot \Delta v \quad (4.3 - 69)$$

¹³Es werden hier grundsätzlich nur kugelförmige Partikeln und Gasblasen angenommen.

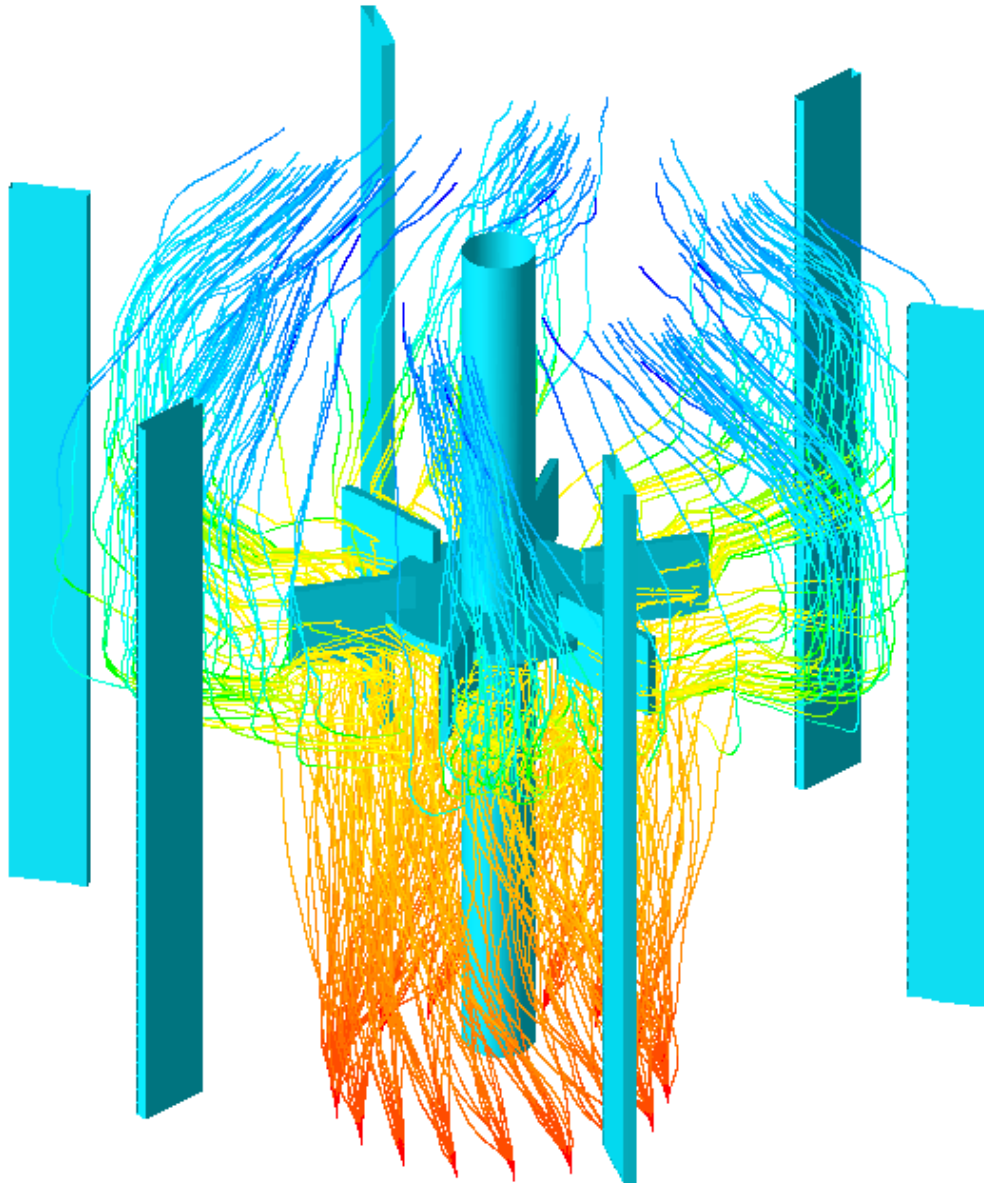


Abbildung 4.4: Beispiel einer Schar von Trajektorien, wie sie in der EULER/LAGRANGE-Methode zur Mehrphasenströmungssimulation berechnet werden. Von jedem Begaserloch gehen viele, turbulenzbedingt stochastisch verformte Blasentrajektorien aus. Die Färbung der Trajektorien zeigt den lokalen Sauerstoffgehalt der in dieser Beispielrechnung mit Stoffübergang simulierten Luftblasen. (Zur Anwendung des Modells werden erheblich mehr Trajektorien berechnet, so daß sie die räumliche Verteilung der dispersen Gasphase im Reaktor widerspiegeln.)

(Hierin ist r der Radius der Partikel.)

Für die Umströmung einer Partikel in einem Fluid wird folgende REYNOLDSzahl definiert:

$$\text{Re}_p = \frac{d_p \cdot \Delta v}{\nu} \quad (4.3 - 70)$$

(Hierin sind $d_p [= 2 \cdot r]$ der Partikeldurchmesser und $\nu [= \frac{\mu}{\rho}]$ die kinematische Viskosität der kontinuierlichen Phase.) Wenn diese Partikel-REYNOLDS-Zahl über den Wert 0,1 wächst, ist das STOKESsche Gesetz nicht mehr erfüllt [212]. Für diesen Fall wird ein allgemeineres Widerstandsgesetz aufgestellt, das auch bei turbulenter Partikelumströmung gilt:

$$F_w = C_w \cdot \frac{\rho}{2} \cdot (\Delta v)^2 \cdot A \quad (4.3 - 71)$$

Hierin ist A die projizierte Anströmfläche in Strömungsrichtung, und C_w ist der Widerstandskoeffizient. Im laminaren Grenzfall ergibt sich dieser zu $C_w = \frac{24}{\text{Re}_p}$; bei voll turbulenter Partikelumströmung ist er konstant: $C_w \approx 0,44$ [96].

In wäßrigen Lösungen verhalten sich Blasen bis über einen Durchmesser von 0,5 mm hinaus wie rigide Partikeln [147, 148].¹⁴

Die meisten anderen der oben aufgeführten Kräfte sind vernachlässigbar. Die Kraft zur Beschleunigung anhaftender Flüssigkeit ist für Gasblasen relevant; sie wird näherungsweise als proportional zum Verhältnis der Dichten von Flüssigkeit und Gasblase angenommen [95].

4.3.3.3 Einfluß der Turbulenz

Turbulenz kann großen Einfluß auf die Trajektorien von Partikeln oder Gasblasen im Strömungsfeld haben. Turbulenzwirbel, die größer sind als die Partikeln und diese umgeben, prägen ihnen kurzfristig ihre (stochastisch verteilten) Geschwindigkeiten auf. Die resultierende Trajektorie ähnelt der BROWNSchen Molekularbewegung, wenn dieser eine gewisse Driftgeschwindigkeit überlagert ist [68].

Die mathematische Beschreibung dieser Vorgänge – zur Integration in die Trajektorienberechnung – verwendet eine charakteristische Zeit ϑ , die angibt, wie lange die Partikel jeweils dem Einfluß eines Turbulenzwirbels ausgesetzt ist. Bei der turbulenten Dispersion von Partikeltrajektorien spielen die größten Wirbel die größte Rolle; deren charakteristische Größe (Durchmesser) kann mit Gleichung 4.1 - 17 (Seite 59) bestimmt werden. Dimensionsanalytisch ist die Verbindung zwischen Länge und Zeit eine Geschwindigkeit; die charakteristische Geschwindigkeit der Turbulenz ist die mittlere Geschwindigkeitsschwankung $\overline{u'} \sim \sqrt{k}$. Mit dieser erhält man leicht die sog. LAGRANGESche integrale Zeitskala ϑ_L [173].¹⁵

$$\vartheta_L = C_L \cdot \frac{k}{\epsilon} \quad (4.3 - 72)$$

Der Dispersionskoeffizient für suspendierte Partikeln in Turbulenz entspricht dem Ausdruck $\vartheta_L \cdot \overline{u'_i \cdot u'_j}$ [95]. Alle Dispersionskoeffizienten in turbulenter Strömung entsprechen ungefähr der turbulenten kinematischen Viskosität ν_t (vgl. Abschnitt 4.2.3.1, auf Seite 71). Daraus läßt sich für C_L der Wert $C_L \approx 0,15$ herleiten.

¹⁴Aus den zitierten Arbeiten [147, 148] geht hervor, daß sich Blasen bis zu einer REYNOLDSzahl von 130 wie (sehr leichte) Feststoffpartikel verhalten. Mit den Stoffwerten von Wasser und einer maximal auftretenden (relativen) Blasenauftiegschwindigkeit von $20 \frac{\text{cm}}{\text{s}}$ ergibt dies einen Blasendurchmesser von 0,65 mm.

¹⁵Die LAGRANGESche Zeitskala ϑ_L wird auch als ein Maß für das mittlere Alter der Turbulenzwirbel im hochfrequenten Randbereich des Energiespektrums interpretiert [42] (vgl. Abschnitt 4.1.2.1, auf Seite 56).

Die momentane, turbulenzbeeinflusste Geschwindigkeit der kontinuierlichen Phase (Flüssigkeit im Bioreaktor) wird aus der Lösung der folgenden, LANGEVINSchen Gleichung ermittelt [144]:

$$du_i = \frac{u_i}{\vartheta_L} dt + \sqrt{\frac{2 \cdot u_i'^2}{\vartheta_L}} d\varpi \quad (4.3 - 73)$$

Hierin ist ϖ eine nach GAUSS verteilte Zufallszahl. (Zur Erzeugung von [Pseudo-] Zufallszahlen existieren langlebige und validierte numerische Algorithmen.¹⁶) Die zeitlich stochastisch variierende Geschwindigkeit u_i in Gleichung 4.3 - 73 kann schließlich als die Geschwindigkeit der (turbulent strömenden) kontinuierlichen Phase bei der Trajektorienberechnung eingesetzt werden.

4.3.3.4 Randbedingungen

Die Trajektorienberechnung muß in geeigneter Weise reagieren, wenn die Trajektorie auf eine Wand trifft, oder wenn sie die Stelle erreicht, an der vorgesehen ist, daß die Partikeln/Blasen das Berechnungsgebiet verlassen sollen. An einer Wand muß die Trajektorie (im Falle einer Blase) reflektiert werden, wie dies für die Bewegung einer realen Blase zu erwarten ist. Wenn eine Blase in einem Rührkesselreaktor hinreichend nahe an die freie Oberfläche gelangt, kann sie mit dieser verschmelzen, so daß sie die Flüssigkeit verläßt.

Während der Trajektorienberechnung wird ständig kontrolliert, ob die Trajektorie z.B. in eine Wand eintritt. In diesem Fall wird die Programmroutine zur Reflexion aufgerufen. Bei diesen Kontrollen wird aber die räumliche Ausdehnung der Blase (Partikel) vernachlässigt – sie ist ein volumenloser Massepunkt, der z.B. in die laminare Grenzschicht an der Wand eindringen kann. Hierauf wird in Abschnitt E.4.2 auf Seite 211 näher eingegangen.

Schwächen der Euler/Lagrange-Methode. Die Approximation der Partikeln oder Blasen durch ausdehnungslose Massepunkt bringt eine wichtige Limitierung des Modells mit sich: Kollisionen von Blasen miteinander können nie erkannt werden. Somit kann Koaleszenz im Modell nur indirekt modelliert werden.¹⁷ Nach den Ausführungen in Abschnitt 2.2.2 (Seite 17) ist Koaleszenz in begasten Bioreaktoren gewöhnlich vernachlässigbar.

Schwerwiegender ist, daß auch abstoßende Wechselwirkungen der Partikeln (Blasen) miteinander vernachlässigt werden müssen. Bei relativen Volumenanteilen (ε_g) der dispersen (Gas-) Phase von mehr als 10% wird der Fehler dieser Approximation merklich; über diese Grenze hinaus sollte die EULER/LAGRANGE-Methode höchstens unter Vorbehalt angewendet werden.

4.3.4 Zusammenfassung

Dieser Abschnitt (4.3) hat einen kurzen Überblick über die wesentlichen Methoden zur numerischen Simulation von (dispersen) Mehrphasenströmungen gegeben. Die EULER/EULER- und die EULER/LAGRANGE-Methode wurden vorgestellt. Die Eigenschaften der verschiedenen Methoden

¹⁶Eine deterministisch arbeitende Rechenmaschine kann natürlich keine echten Zufallszahlen produzieren; die angesprochenen Algorithmen produzieren (reproduzierbare) Sequenzen von Zahlen, deren apparent zufällige Verteilung von Zahl zu Zahl mit Visualisierungsmethoden anschaulich demonstriert werden kann. Die Sequenz kann jeweils immer bei demselben Wert starten, oder sie kann mit einer echten Zufallszahl (z.B. aus Datum und Uhrzeit der Programmausführung) initialisiert werden.

¹⁷Auch das simultane Berechnen aller Trajektorien mit gleichzeitigem Prüfen auf die notwendige Nähe zweier Blasenmittelpunkte für eine Kollision wäre keine Abhilfe, da nicht genau so viele Trajektorien berechnet werden könnten, wie physikalische Blasen im Strömungsgebiet existieren. Die numerischen Trajektorien sind nur (in hinreichender Anzahl) „Stellvertreter“ für die physikalischen Einzelpartikeln der dispersen Phase.

wurden aufgezeigt. Da die EULER/EULER-Methode keine variablen Blasengrößen und Größenverteilungen zuläßt, und da sie eine numerisch diffizile Methode ist, die mit der direkten geometrischen Rührersimulation nur schwer (wenn überhaupt) vereinbar ist, wurde für die vorliegende Arbeit die EULER/LAGRANGE-Methode gewählt. Deren Verwendung in einer Simulation von Stoffaustausch und -transport, zudem ausgehend von einer direkten geometrischen Rührersimulation, ist eine Neuheit, deren Details im folgenden Kapitel beschrieben werden.

Kapitel 5

Modellentwicklung

Im folgenden wird beschrieben, wie – ausgehend vom bisherigen Stand der veröffentlichten Arbeiten, und unter Verwendung der dargestellten Modelltheorie – ein vollständiges numerisches, verteilparametrisches Modell für die Stoffaustausch- und -transportvorgänge in begasten Rührkesselreaktoren entwickelt wurde.

5.1 Geometrie und Netz

Das Modell basiert auf der numerischen Strömungssimulation mit Hilfe der Finite-Volumen-Methode.¹ Dafür muß die gegebene Reaktorgeometrie mit allen Einbauten in ein Netz von Kontrollvolumina zerlegt werden.

5.1.1 Versuchsreaktor

Im Lauf der Arbeit wurde ein kleiner Pilot- und Produktionsreaktor mit 15 Litern Gesamtvolumen für Validierungsexperimente eingesetzt. (Der Reaktor war nach Vorgaben der GBF Braunschweig maßgefertigt worden und besitzt daher keine standardisierte Produktbezeichnung.) Für sämtliche Simulationsrechnungen wurde die Geometrie dieses Reaktors, bei Betrieb mit fünf Litern Arbeits- (Flüssigkeits-) -volumen, zu Grunde gelegt. Sie ist in Abbildung 5.1 und in Abbildung 5.2 (Seite 89), bei voller Bestückung mit Sonden und interner Verrohrung (Begasungs- und Steigleitungen), skizziert.

Die Hauptcharakteristika des Reaktors sind folgende: Der (gläserne) Behälter hat einen halbkugelförmigen Boden und 20 cm Innendurchmesser; eine Rührerwelle von 20 mm Durchmesser ragt von oben in den Reaktor und endet 35 mm über dem Reaktorboden. In 115 mm Höhe über dem Reaktorboden ist auf der Welle ein Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer mit Nabe montiert. Die Scheibe hat einen Durchmesser von 8 cm; an ihrem Umfang sind, ausschließlich nach außen ragend, sechs Rührerblätter mit einer Höhe von 22 mm und einer Breite von 24 mm angesetzt. Die Nabe ist 35 mm hoch und 29 mm dick.

Der Reaktor ist mit vier Schikanen ausgerüstet; sie sind 24 mm breit, 8,5 mm dick und haben 6 mm Abstand zur Reaktorwand. Ihre Ecken sind allseitig abgerundet. Dies ist in Abbildung 5.2 (Seite 89) nicht dargestellt; diese Tatsache mußte auch in den Strömungssimulationen unberücksichtigt bleiben. Die räumliche Diskretisierung (Auflösung im Rechnetz) der Rundungen hätte

¹Die numerische Simulation erlaubt die Verwendung detaillierter, ortsauflösender Strömungsinformation bei prinzipiell unbegrenzter räumlicher Auflösung; mit der Simulation können auch für bisher nicht untersuchte Geometrien und Betriebszustände fundierte Voraussagen gemacht werden.

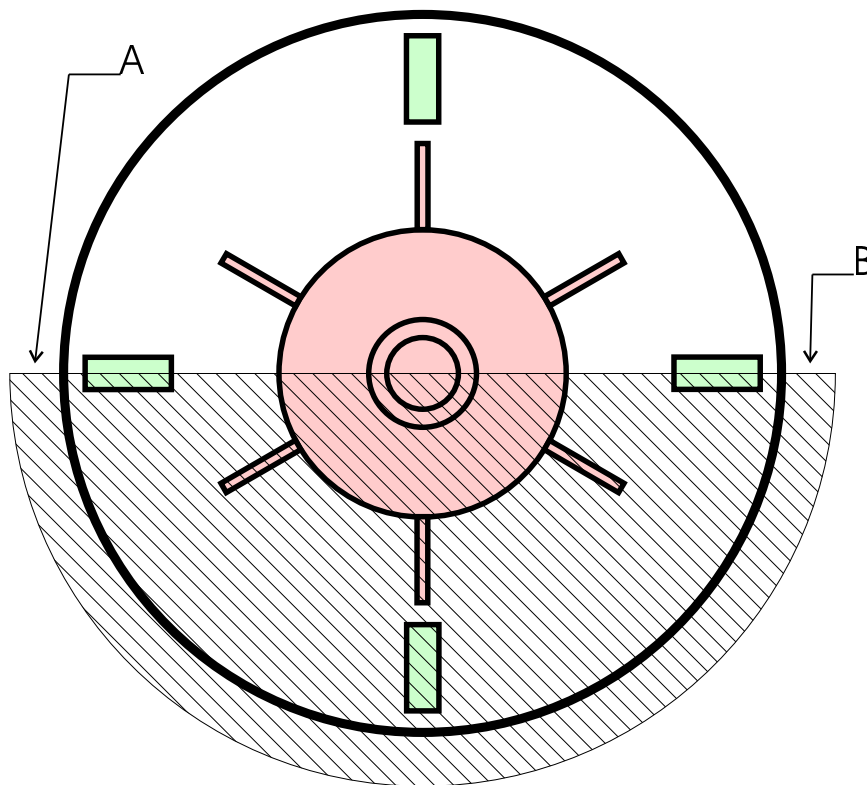


Abbildung 5.3: Die Geometrie des Pilotreaktors mit Sechsstab-Scheiben-Rührer und vier Strömungsbrechern erlaubt die Reduktion der Strömungssimulation auf ein halbes Reaktorvolumen. Der schraffierte Teil zwischen den radialen Schnittflächen **A** und **B** wird durch einen „topologischen Kurzschluß“ überbrückt.

allen strömungsrelevanten Details im Simulationsgitter abgebildet werden.

Es ist selbstverständlich, daß die oben beschriebene Reduktion der Simulation auf zwei Dimensionen (Abschnitte 3.3.1 [S. 40] und 3.4.1.1 [S. 47]) nicht möglich ist, wenn eine direkte Simulation des Rührers in seiner physikalischen Geometrie und Bewegung auszuführen ist. Der Rührer und auch der Reaktorbehälter mit seinen statischen Einbauten sind aber periodisch rotationssymmetrisch; ihre Geometrien sind jeweils aus mehreren identischen Symmetrieperioden aufgebaut. Die (dreidimensionale) Strömungssimulation kann daher im Normalfall auf eine einzelne solche Symmetrieperiode beschränkt werden.

Die Periodengröße des Sechsstab-Scheiben-Rührers beträgt 60° , diejenige des Reaktorbehälters mit vier Schikanen ist 90° . Das kleinste gemeinsame Vielfache ist 180° (vgl. Abbildung 5.3); so groß muß das Berechnungsgebiet gewählt werden, um die Realität des verwendeten Pilotreaktors im Modell korrekt abzubilden.

5.1.3 Netz für Vorstudien

In der (biotechnologischen) Praxis besitzen Rührkesselreaktoren meistens Strömungsbrecher. Somit kommen, wenn Rührer-Ersatz-Modelle² mangels Meßdaten nicht in Frage kommen, folgende zwei Methoden zur Strömungssimulation in Betracht: Die pseudostationäre (Abschnitt 3.3.4.3 auf

²Vgl. Abschnitt 3.3.3, auf Seite 42.

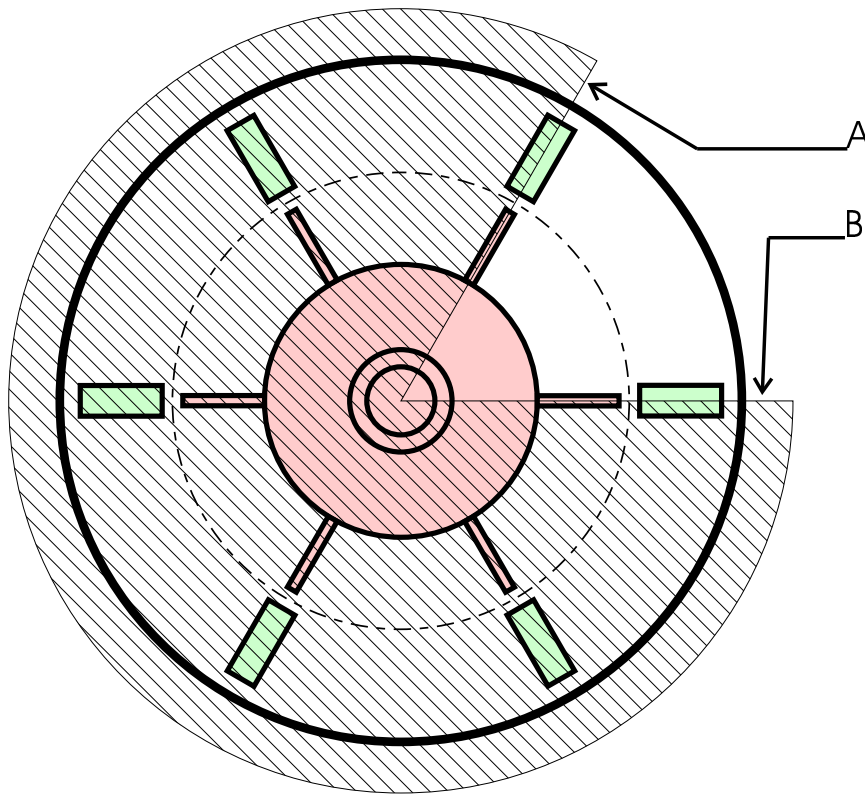


Abbildung 5.4: Führt man sechs Strömungsbrecher ein, läßt sich die Simulation auf ein Sechstel des Reaktors beschränken. Der gesamte schraffierte Teil zwischen den radialen Schnittflächen **A** und **B** wird durch einen „topologischen Kurzschluß“ überbrückt. Er enthält fünfmal exakt dasselbe Strömungsfeld wie der simulierte Sektor. Als gestrichelter Ring ist die Grenze zwischen rotierendem (innen) und stehendem (außen) Koordinatensystem markiert.

Seite 44) und die voll instationäre Simulation (Abschnitt 3.3.4.5, auf Seite 45). Die pseudostationäre Methode stellt eine Vereinfachung dar, die in gewisser Weise von der Realität abstrahiert, dabei aber nur einen Bruchteil der Rechenzeit einer voll instationären Simulation benötigt. Deswegen wurden diese beiden Methoden zunächst verglichen.

Der bloße Vergleich der pseudostationären und der instationären Simulationsmethode muß für einen *hypothetischen Reaktor* mit *sechs* Strömungsbrechern vergleichbare Ergebnisse liefern wie für den realen Reaktor. Solch ein Reaktor kann mit einem Segment von nur 60° korrekt in einer Simulation abgebildet werden (s. Abbildung 5.4). Zur Einsparung von Rechenzeit wurde daher in der hier beschriebenen Voruntersuchungen nur ein solches 60° -Segment berechnet.

Das Berechnungsgebiet ist in Abbildung 5.5 dargestellt. Es wurde in 57600 Einzelvolumina diskretisiert. Die Gitterfeinheit ist in der Abbildung als ebenes Oberflächennetz auf den radialen Schnittflächen des Reaktorsegmentes dargestellt. In Umfangsrichtung wurde in 32 Zellagen unterteilt.

5.1.4 Netz der vollen Geometrie

Der reale Pilotreaktor enthielt, neben dem Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer, *vier* Strömungsbrecher im Winkel von jeweils 90° zueinander. In der Simulation mußte daher ein Segment von 180° bear-

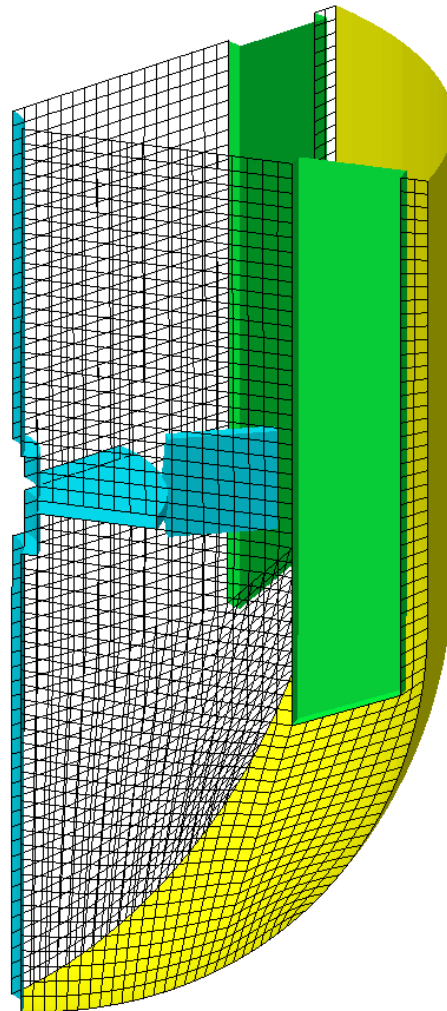


Abbildung 5.5: Darstellung des Berechnungsgebietes für die Vorstudien zur Strömungssimulation. Die radialen Schnittflächen, zwischen denen eine direkte topologische Verknüpfung hergestellt wird, sind in dünnen Gitterlinien dargestellt. Sie deuten die Gitterauflösung in radialer und axialer Richtung an. In Umfangsrichtung wurde in 32 ungleichmäßig verteilte Winkelschritte unterteilt, so daß eine hohe räumliche Auflösung am Rührerblatt erreicht wurde (vgl. linke Seite in Abbildung E.2, auf Seite 209).

beitet werden (vgl. Abschnitt 5.1.2 [S. 90] und Abbildung 5.3 [S. 90]). Es wurden Achse, Rührer und Schikanen in das Modell aufgenommen. Die abgerundete Form der Strömungsbrecher mußte wiederum durch scharfkantige Ecken abgebildet werden, wie oben bereits erklärt (s. Abschnitt 5.1.1, auf Seite 87).

Der Begaserring, seine Zuleitung und der Ring zwischen den Schikanen sowie die weiteren fest stehenden Einbauten konnten bei der Netzgenerierung nicht berücksichtigt werden. Die Abbildung ihrer runden, leicht umströmbaren Formen im strukturierten Netz für das verwendete Simulationsprogramm (FLUENT, Version 4.4) wäre nur bei einer Vervielfachung der verwendeten Gitterzellzahl möglich gewesen. Dies hätte aber die Kapazität der verfügbaren Rechner bei weitem überstiegen.³

Grundsätzlich können beliebige Formen in strukturierten Hexaedernetzen *angenähert* werden, indem ausgewählte Gitterzellen nachträglich zu Wandbereichen undefiniert werden. Das hätte aber extrem kantige Reaktoreinbauten im numerischen Modell produziert, die in Vorstudien mit einfachen Geometrien und Netzen unrealistisch hohe Turbulenzproduktion an ihren Kanten zeigten. Ihre Berücksichtigung hätte auf diese Art mehr Fehler produziert, als ihre Vernachlässigung, die deswegen vorgezogen wurde. Die Vernachlässigung war deswegen akzeptabel, weil die Einbauten dünne, runde Querschnitte hatten, die generell leicht zu umströmen sind, so daß sie ohnehin nur relativ geringen Einfluß auf die Flüssigkeitsströmung hatten.

Abbildung 5.6 zeigt eine perspektivische Ansicht der Reaktorgeometrie, wie sie im Rechengitter diskretisiert wurde. Das halbe Reaktorvolumen wurde in knapp 200.000 einzelne Kontrollvolumina unterteilt. (Zusätzlich ist, als Oberflächennetz, die Grenzfläche zwischen dem inneren, im rotierenden Bezugssystem behandelten, Teilgebiet und dem Rest des Rechengebietes dargestellt. [S. a. Abschnitt 5.2.3.2, auf Seite 96.]

5.2 Flüssigkeitsströmung

5.2.1 Rotierende Teile

Sowohl in der pseudostationären als auch in der voll instationären Simulation muß ein inneres Teilgebiet in Rührernähe definiert werden. In der pseudostationären Simulation wird in diesem Teilgebiet mit Geschwindigkeitswerten *relativ* zum Rührer, d. h. in einem *rotierenden Bezugssystem* gerechnet (vgl. Abschnitt 3.3.4.3, auf Seite 44).⁴ An der Grenzfläche zwischen den Teilbereichen werden die Geschwindigkeitswerte aus dem rotierenden Bezugssystem in das außen liegende, fest stehende Koordinatensystem transformiert. (Eine Mittelung in Umfangsrichtung, wie in Abschnitt 3.3.4.4 [S. 45] beschrieben, fand nicht statt.)

In der voll instationären Simulation wird das Diskretisationsgitter im inneren Teilbereich in regelmäßigen Zeitschritten gegenüber dem äußeren Teilgitter verdreht.⁵ Es folgt dabei genau der in diesen Zeitschritten simulierten Rührerbewegung. Für jeden Zeitschritt werden die Nachbarschaftsverhältnisse zwischen den Volumenelementen (Zellen) auf beiden Seiten der Grenzfläche neu bestimmt und berücksichtigt (vgl. Abschnitt 3.3.4.5, auf Seite 45). Die Grenzfläche zwischen den beiden Teilbereichen muß, wegen des Abgleitens der Netze aufeinander, die Oberfläche eines Rotationskörpers sein.

³Inzwischen sind, mit Nachfolgeversionen des verwendeten Programms, genaue Darstellungen solcher Geometrien im Netz problemlos möglich.

⁴Nur auf diesem Wege kann eine Grundbedingung für die Lösung der NAVIER-STOKES-Gleichungen erfüllt werden; diese besteht darin, daß (im jeweiligen Bezugssystem!) eine *Wand* keine Bewegungskomponente *normal* (orthogonal) zur Ebene ihrer eigenen (lokalen) Ausdehnung haben darf.

⁵Zusätzlich zu dem in Fußnote 4 Gesagten wird hiermit auch erreicht, daß die Simulation der (periodischen) zeitlichen Veränderung von Geometrie und Strömung (auf Grund der Rührerrotation) Rechnung trägt.

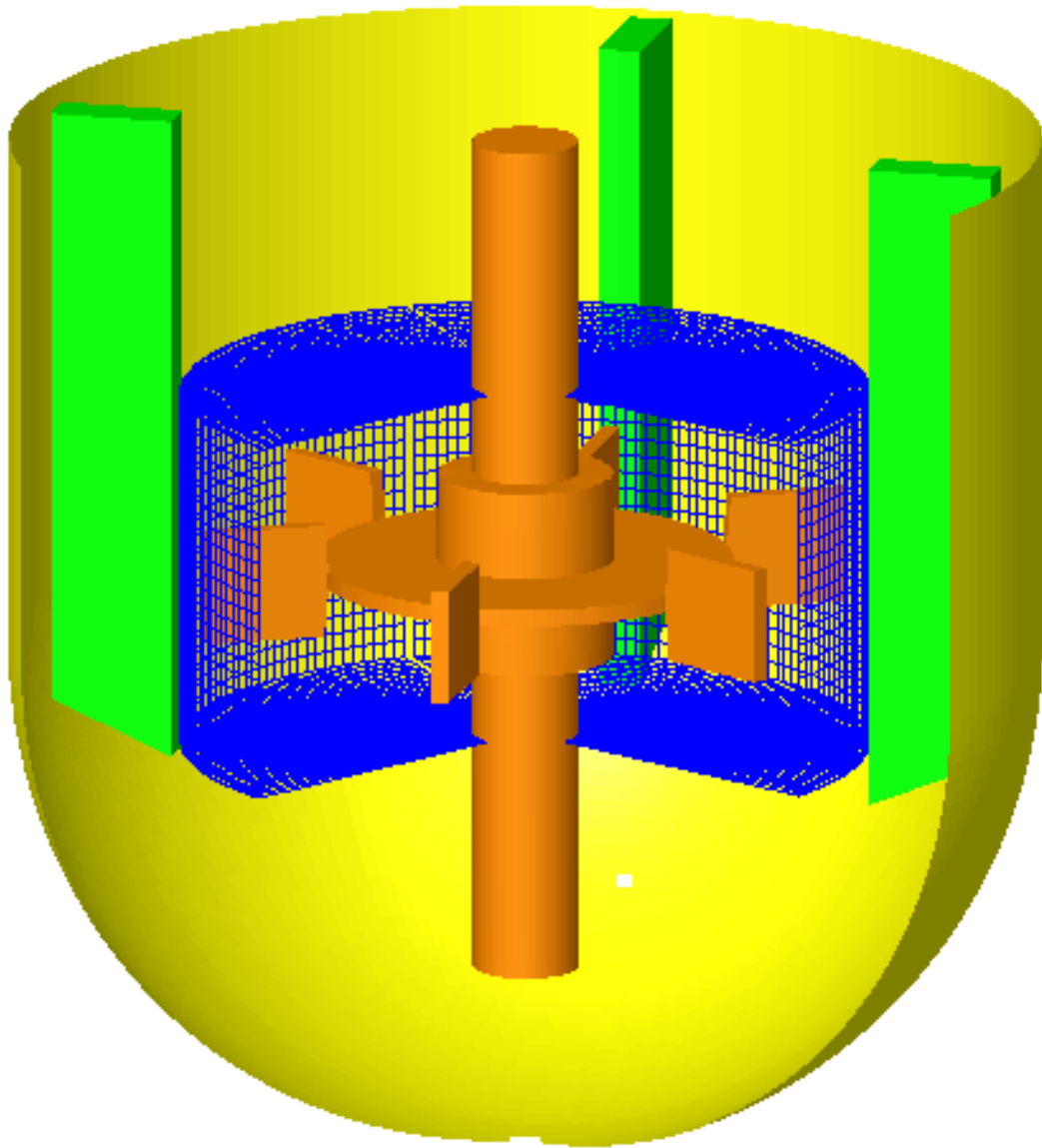


Abbildung 5.6: Die Geometrie des Rechengebietes für die instationäre Strömungssimulation in der korrekten Reaktorgeometrie (6BSR und vier Strömungsbrecher). Als blaues Gitter ist die räumliche Anordnung der Grenzfläche zwischen dem inneren, rotierenden und dem äußeren, fest stehenden Teilkoordinatensystem gezeigt (vgl. auch Abschnitt 5.2.3.2, auf Seite 96).

Gebietsgrenze. In den durchgeführten Vergleichsberechnungen – vgl. Abschnitt 5.1.3, auf Seite 90 – wurde die Grenzfläche jeweils identisch definiert. Sie entsprach einem einfachen Zylinder, dessen Radius mittig zwischen der Außenkante der Rührerblätter und der Innenkante der Schikannen lag. Der Radius ist in Abbildung 5.4 (Seite 91) als gestrichelter Kreis dargestellt.

Die Oberseite des Zylinders war nur durch eine Zellage von der freien Oberfläche getrennt; letztere wurde durch die Randbedingung vollständiger Gradientenfreiheit (VON NEUMANNsche Randbedingung) aller Simulationsgrößen angenähert. Zwischen der Unterseite des inneren Teilbereiches und dem Reaktorboden lagen genau zwei Zellagen.

5.2.2 Ausführung

Die Strömungssimulation wurde mit FLUENT, Versionen 4.4 und 4.5, durchgeführt. Es wurden die Stoffwerte von Wasser angenommen und eine Rührerdrehzahl von 180 Umdrehungen je Minute eingestellt. Die auftretende Turbulenz wurde mit dem Standard- k,ϵ -Modell beschrieben (vgl. Abschnitt 4.2.3, auf Seite 70).

Im Fall der pseudostationären Berechnung wurde solange iteriert, bis sich an einer weit vom Rührer entfernten Stelle (nahe der freien Oberfläche) Strömungsgeschwindigkeit und -richtung nicht mehr änderten. In der instationären Berechnung wurde prinzipiell genauso verfahren; hier waren aber die (zeitabhängigen) Geschwindigkeitswerte von einer Oszillation überlagert; diese rührte von der Bewegung des Rührers her, und ihre Frequenz betrug das Sechsfache der Rührerdrehzahl (Scheibenrührer mit *sechs* Rührerblättern).

Liegt die Kontrollposition, an der die Geschwindigkeitswerte über der (simulierten) Zeit verfolgt werden, im rotierenden Teilbereich des Rechengebietes, so sieht man eine Oszillation, deren Frequenz das Produkt aus der Rührerdrehzahl und der Anzahl der Strömungsbrecher im Reaktor ist.

5.2.3 Ergebnisse

Abbildung 5.7 und Abbildung 5.8 (Seite 97) zeigen in einer Gegenüberstellung die Voraussagen von pseudostationärer und voll instationärer Simulationsmethode für das Strömungsfeld. Es zeigen sich nur geringe, lokale Unterschiede im Strömungsbild. Dies impliziert, daß die Vereinfachung der pseudostationären Methode das Simulationsergebnis nicht wesentlich beeinflusst.

Die pseudostationäre Berechnungsmethode kann nur dann sinnvolle Ergebnisse liefern, wenn (auch in der Realität) die Strömungswerte entlang der Grenze zwischen den Teilbereichen in Umfangsrichtung (!) nicht wesentlich variieren. Die voll instationäre Simulation kann als verlässlichste Informationsquelle über die reale Strömung angesehen werden. Aus ihr wurden umfangreiche Bilderserien gewonnen; sie zeigen, daß die genannte Bedingung für alle Geschwindigkeitskomponenten erfüllt ist. Auch dies unterstützt die Annahme der Verwendbarkeit der pseudostationären Simulationsmethode.

5.2.3.1 Turbulenz

Für das in dieser Arbeit entwickelte Gesamtmodell hat die lokale Energiedissipationsrate als Charakteristikum lokaler Turbulenz eine große Bedeutung. (Sie beeinflusst maßgeblich den Blasen-durchmesser und den ortsabhängigen Stoffaustausch zwischen Gasblasen und Flüssigkeit.) Ein Vergleich der Voraussagen beider Simulationsmethoden für die ortsabhängige Energiedissipationsrate ist in Abbildung 5.9 auf Seite 98 zu sehen. Die vorausgesagten räumlichen Verteilungen zeigen keinerlei Ähnlichkeit!

Die voll instationäre Simulation abstrahiert weniger von der Realität und ist deswegen als wesentlich verlässlicher anzusehen. Außerdem stimmen ihre Vorhersagen sehr gut mit hochgradig

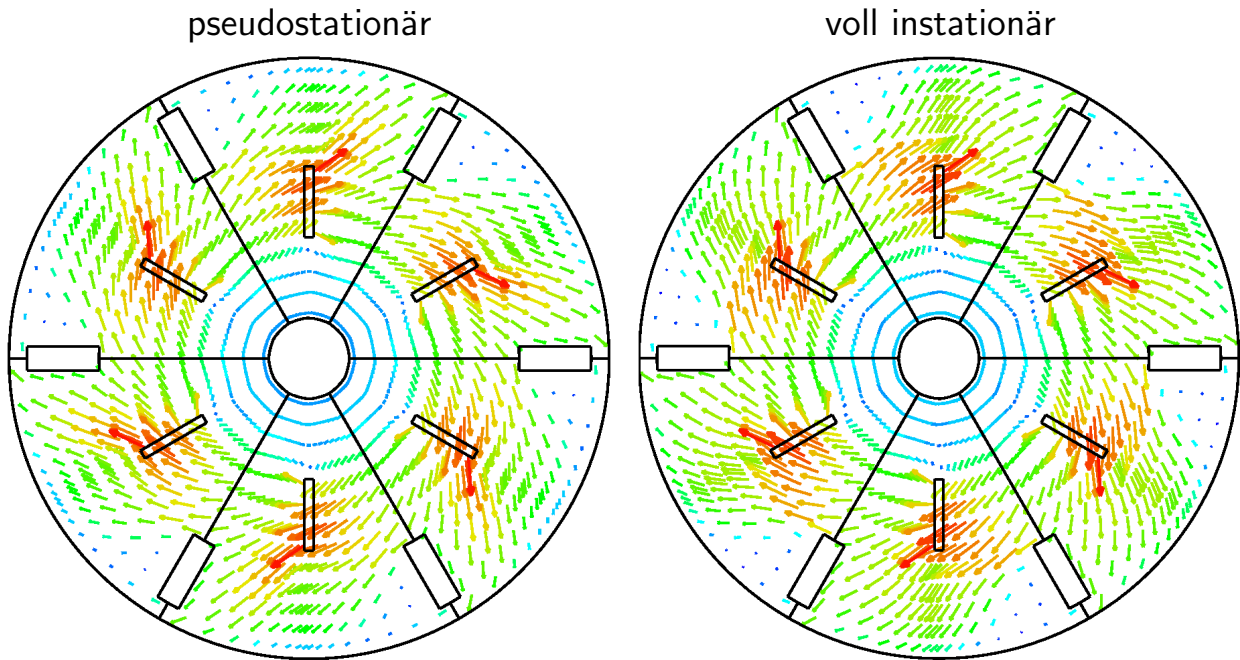


Abbildung 5.7: Vergleich der Voraussagen von pseudostationärer und voll instationärer Simulation für das Strömungsfeld in der Rührerebene. Der Rührer dreht sich mit 180 Upm im Uhrzeigersinn. Die Farben geben die lokalen Geschwindigkeitsbeträge wieder; die Skala geht von dunkelblau ($0 \frac{\text{m}}{\text{s}}$) über hellblau, grün und gelb nach rot ($1,48 \frac{\text{m}}{\text{s}}$; vgl. die Farbskala in Abbildung E.1 [S. 209]).

ortsauflösenden Meßergebnissen an einer ähnlichen Rührergeometrie überein [132, 275]. Für die weitere Modellentwicklung wurden deshalb ausschließlich Strömungsdaten aus voll instationären Strömungssimulationen verwendet.

5.2.3.2 Gittereinfluß

Bei der Betrachtung der räumlichen Verteilung der turbulenten Energiedissipationsrate ϵ zeigte sich in *instationären* Simulationen ein störender Effekt der ungleichmäßigen Winkelteilung des verwendeten Rechengitters. Zur Beseitigung der resultierenden Artefakte wurde eine *regelmäßige Winkelteilung* für die verwendeten Rechengitter eingeführt. Nähere Einzelheiten hierzu sind im Anhang E.3.2 auf Seite 208 beschrieben.

Weiterhin wurde für die endgültigen Berechnungen in der korrekten Geometrie (6BSR und vier Strömungsbrecher) die axiale (vertikale) Ausdehnung des inneren, rotierenden Bezugssystems verkleinert. Die Anordnung der Grenze zwischen dem rotierenden und dem fest stehenden Teilbereich für die Simulation im 180°-Sektor der realen Geometrie zeigt Abbildung 5.6 (Seite 94).

5.2.4 Lokale Zeitmittelung

Die instationäre Strömungssimulation im Rührkessel hat ein periodisch veränderliches räumliches Strömungsbild zum Ergebnis.

Die nachfolgenden Modellteile (-schritte: Gasphasenströmung, Stoffaustausch und -transport einschließlich -verbrauch) werden jetzt von der Berechnung der *instationären* Flüssigkeits-

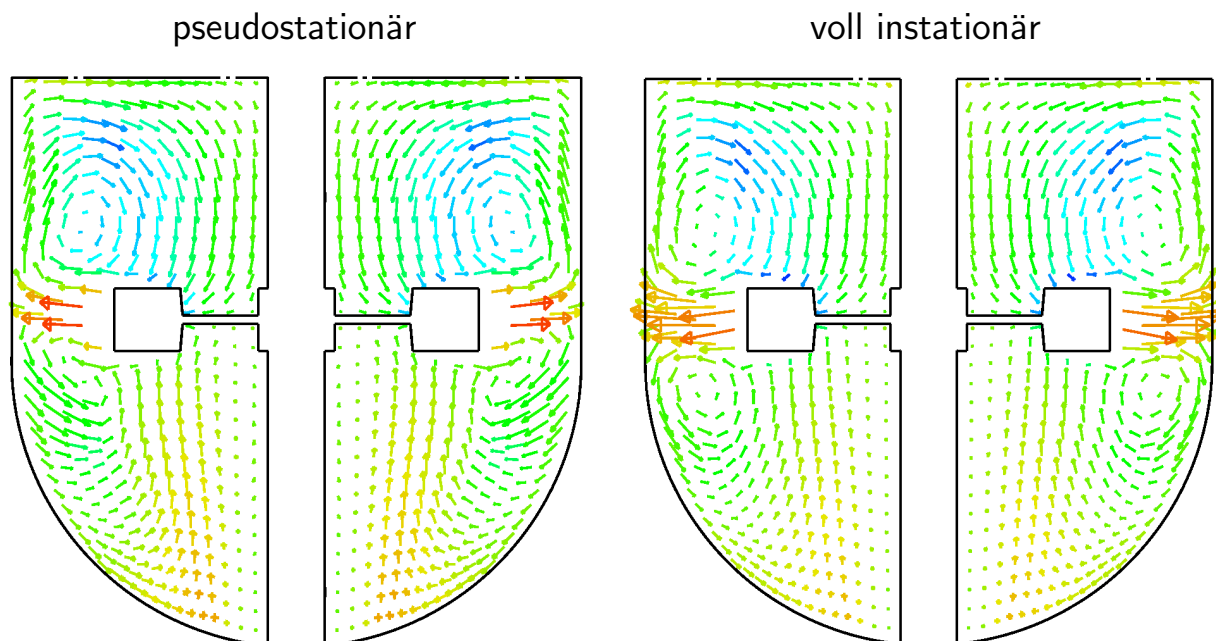


Abbildung 5.8: Vergleich der Voraussagen von pseudostationärer und voll instationärer Simulation für das Strömungsfeld in der vertikalen Mittelebene. Die Farben geben die lokale Geschwindigkeit in Umfangs- (Rotations-) Richtung wieder; die Skala geht von dunkelblau ($-0,22 \frac{\text{m}}{\text{s}}$, also entgegen der Rührerdrehrichtung) über hellblau, grün ($0 \frac{\text{m}}{\text{s}}$) und gelb nach rot ($0,65 \frac{\text{m}}{\text{s}}$; vgl. die Farbskala in Abbildung E.1 [S. 209]).

strömung entkoppelt betrachtet. (D.h. sie werden auf der Grundlage eines einzigen, zeitgemittelten Strömungsfeldes modelliert.) Dafür muß ein einziges, konstantes Strömungsfeld von der ersten Strömungssimulation an diese weiteren Modellstufen weitergegeben werden.⁶

Der einfachste Weg wäre, eine möglichst repräsentative Momentaufnahme aus der periodischen Veränderung herauszugreifen und in die weiteren Modellstufen zu geben. Hier wurde aber ein anderer Weg beschritten: Die Strömung wurde an jeder einzelnen Position im Reaktor über der Zeit gemittelt, und zwar über genau eine Periodendauer der periodisch exakt wiederkehrenden Strömung. Dabei mußte aber auf korrekte Weise die erwähnte „Position im Reaktor“ definiert werden: Im fest stehenden Reaktorbehälter mit Strömungsbrechern und Einbauten besteht hier kein Problem. Unmittelbar am Rührer müssen aber die einzelnen Stützpunkte für die zeitliche Mittelung *mit* dem Rührer rotieren. Sie liegen also stationär im lokalen, mit dem Rührer rotierenden Koordinatensystem. Letzteres wird für die instationäre Strömungssimulation ohnehin angelegt; es wurde daher auch für die Zeitmittelung verwendet.

Ergebnisse. Die Ergebnisse der instationäre Strömungsberechnung für die Flüssigkeit in der korrekten Reaktorgeometrie (mit vier Strömungsbrechern) unterscheiden sich nur wenig von den Ergebnissen der instationären Simulation für die (auf ein 60°-„Tortenstück“) vereinfachte Geometrie in der Voruntersuchung; letztere sind in den Abbildungen 5.7, 5.8 und E.1 (Seite 209), jeweils auf der rechten Seite, dargestellt. In Details existieren dennoch Unterschiede, die den Mehrauf-

⁶Einen Überblick über Inhalt und Abfolge der einzelnen Modellschritte gibt die Zusammenfassung, s. Abschnitt 5.5.3 auf Seite 117.

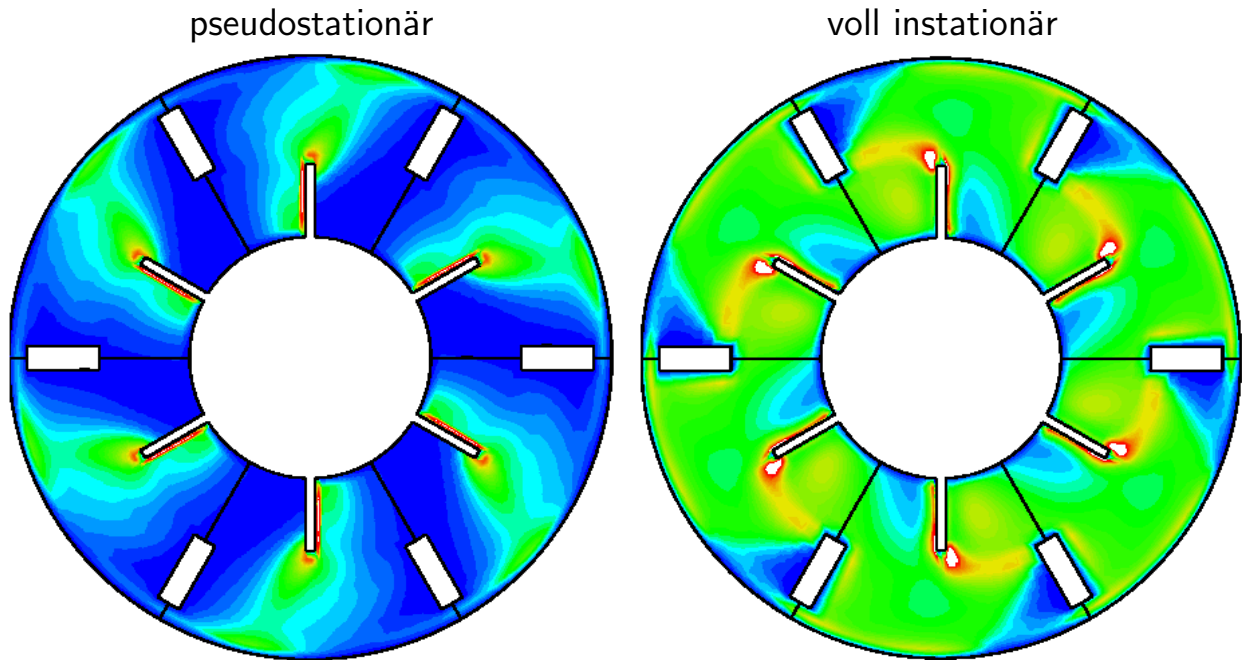


Abbildung 5.9: Vergleich der Voraussagen von pseudostationärer und voll instationärer Simulation für die lokale spezifische Energiedissipationsrate (ϵ) in der Rührerebene. Der Rührer dreht sich mit 180 Upm im Uhrzeigersinn. Die Farbskala für die dargestellten Werte geht von dunkelblau ($0 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^3}$) über hellblau, grün und gelb nach rot ($3 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^3}$; vgl. die Farbskala in Abbildung E.1 [S. 209]).

wand im 180°-Grad-Sektor rechtfertigen – die Unterschiede können vor allem einen erheblichen Einfluß auf die Endergebnisse des entwickelten Gesamtmodells haben. Dort sind Auswirkungen solcher (vermeidbaren) Vereinfachungen schwer quantifizierbar; deswegen wurden sie von vornherein vermieden.

5.2.5 Zusammenfassung

Die Simulation der Flüssigkeitsströmung wird nach der allgemein anerkannten *Finite-Volumen-Methode* ausgeführt. Es wird kein Rührer-Ersatz-Modell verwendet, sondern die Flüssigkeitsströmung wird aus Geometrie, Stoffeigenschaften und Betriebsparametern (Drehzahl) *vorausgesagt*.

In einer Voruntersuchung mit vereinfachter Geometrie (periodisch wiederkehrend in 60°-Segmenten) wurden pseudostationäre (*“multiple reference frames”*) und voll instationäre (*“sliding meshes”*) Methode miteinander verglichen. Die Strömungsfelder waren sehr ähnlich, aber die Voraussagen für die räumliche Verteilung der turbulenten Energiedissipationsrate ϵ erwiesen sich nur aus der voll instationären Simulationsrechnung als brauchbar.

Von der vollständigen Geometrie des vorgegebenen Versuchsreaktors (Abbildungen 5.1 und 5.2, auf Seite 89) konnten nur Welle, Rührer und Strömungsbrecher im voll strukturierten Rechengitter abgebildet werden, um die Anzahl benötigter Kontrollvolumina vertretbar zu halten. Wegen der 90°-Symmetrie der vierzähligen Strömungsbrecher und der 60°-Symmetrie des Rührers mußte ein 180°-Segment des Reaktors in der Simulation abgebildet werden.

Das zeitlich periodisch veränderliche Strömungsfeld wird für die weitere Verwendung in den

nachfolgenden Modellschritten an jedem Punkt im Reaktor (d.h. für jedes Kontrollvolumenelement) über eine Periode *gemittelt*. Dabei wird die Position der Mittelung im jeweiligen Bezugssystem (fest stehend oder mit dem Rührer rotierend) definiert, um die räumlichen Strukturen der rührernahen Strömung korrekt zu erfassen und bei der Mittelung zu erhalten.

5.3 Gasphasenströmung

Auf der Grundlage des – gemäß den Ausführungen im vorigen Abschnitt berechneten – Strömungsfeldes für die Flüssigkeit wurde die Strömung der dispersen Gasphase (Blasenpopulation) modelliert.

5.3.1 Die Methode

Für die numerische Simulation von Mehrphasenströmungen standen im verwendeten Strömungssimulationsprogramm FLUENT⁷ grundsätzlich die EULER/EULER- und die EULER/LAGRANGE-Methode zur Verfügung (vgl. Abschnitte 4.3.2 und 4.3.3, auf Seite 81). Erstere ist nur unter hohem Aufwand mit der direkten numerischen Simulation eines rotierenden Rührorgans in Geometrie und Bewegung zu verbinden. Deswegen wurde in der hier beschriebenen Arbeit die EULER/LAGRANGE-Methode gewählt. Sie bietet zusätzlich die Möglichkeit, bei unverändertem numerischem Aufwand eine Blasengrößenverteilung, *Veränderungen* dieser Verteilung sowie eine *lokal* verteilte (uneinheitliche) Blasen*zusammensetzung* zu berücksichtigen.

5.3.1.1 Eigenschaften

Die Simulation einer partikulären Strömung nach der LAGRANGE-Methode besteht darin, daß Bewegungsbahnen für einzelne Partikeln der dispersen Phase (in diesem Fall: Gasblasen) berechnet werden. Dazu wird einfach die Bilanz aller auf die Partikel wirkenden Kräfte über der Zeit integriert, woraus die Bewegung der Partikeln in kleinen Zeitschritten zu errechnen ist. Wenn die Partikel eine Grenze des Berechnungsgebietes erreicht, wird eine entsprechende Aktion vollzogen – an Wänden ist dies i.d.R. eine Reflexion.

Bei der Partikelbahnberechnung kann auch der ungeordnete Einfluß von Turbulenz auf die Bewegung der Blasen simuliert werden (vgl. hierzu Abschnitt 4.3.3.3, auf Seite 84). Das führt dazu, daß jede Trajektorie einen eigenen, wie in der Realität nicht vorhersagbaren Weg geht. Werden nun *viele* Trajektorien gerechnet, verteilt sich die disperse Gasphase in diesem numerischen Modell wie in der Realität mehr oder weniger gleichmäßig über das Flüssigkeitsvolumen.

Die beschriebene Vorgehensweise erfordert für ihre Anwendbarkeit, daß die disperse Phase an definierter Stelle in das Rechenggebiet eintritt und es auch eindeutig wieder verläßt. Dies ist für die disperse Gasphase in begasten Rührkesselreaktoren immer erfüllt. Weiterhin vernachlässigt die verwendete Implementation der EULER/LAGRANGE-Methode mögliche Kollisionen (und damit Koaleszenz) einzelner Partikeln (Gasblasen) der dispersen Phase miteinander.⁸

5.3.1.2 Entkopplung

Mit der LAGRANGE-Methode ist es (in FLUENT) auch möglich, den Einfluß der dispersen Phase (Gasblasen) auf die Strömung der kontinuierlichen Phase (Flüssigkeit) zu berücksichtigen. Dafür

⁷Es wurden die Versionen 4.4 und 4.5 von FLUENT verwendet.

⁸Diese Einschränkung aufzuheben ist prinzipiell möglich; eine praktikable Methode dafür zu finden, ist Gegenstand laufender Forschungsanstrengungen [295].

wird in jedem Kontrollvolumen der Impulsaustausch von der dispersen Phase auf die kontinuierliche Phase aufsummiert. Diese Impulsquellterme werden dann bei einer erneuten Berechnung der Flüssigkeitsströmung eingerechnet. Ein wiederholter Wechsel zwischen Trajektorien- und Flüssigkeitsströmungsberechnung konvergiert letztlich zu einem physikalischen Ergebnis für die gekoppelte Mehrphasenströmung.

Das hier entwickelte Modell koppelt eine *instationäre*, direkte Rührersimulation mit der Berechnung einer Mehrphasenströmung. Diese Neuentwicklung erforderte einige Eingriffe in die Trajektorienberechnung (siehe den nächsten Abschnitt). Dies hat zur Folge, daß die bidirektionale Kopplung⁹ in der Mehrphasenströmung nicht mehr ohne weitere Eingriffe im Simulationsprogramm physikalisch sinnvoll simuliert werden konnte.¹⁰

In der vorliegenden Arbeit wurde daher auf diese Kopplung verzichtet. In gering begasten Prozessen, für die das hier beschriebene Modell entwickelt wurde (vgl. auch Abschnitt 5.3.4.2, auf Seite 106), ist der damit eingegangene Fehler hinreichend vernachlässigbar. Soll das Modell auf stärker begaste Prozesse angewendet werden, müssen entsprechend zusätzliche Modifikationen im Simulationsprogramm implementiert werden, um eine Verbindung des hier entwickelten Modells mit einer *gekoppelten* Mehrphasenströmungssimulation nach der EULER/LAGRANGE-Methode zu ermöglichen.¹¹

5.3.2 Relativität

Bei der Berechnung der Flüssigkeitsströmung wurde in einem Teilvolumen nahe des Rührers mit *relativen* Geschwindigkeiten in Bezug auf den Rührer gearbeitet. Für die Berechnung der Gasblasentrajektorien rechnet FLUENT¹² diese Geschwindigkeiten automatisch in absolute Geschwindigkeiten um. Solch ein Strömungsbild ist in Abbildung 5.10 auf der linken Seite gezeigt.

5.3.2.1 Problem

Während der Berechnung von Trajektorien kann keinerlei zeitliche Veränderung der Strömung oder der Geometrie des Berechnungsgebietes berücksichtigt werden.¹³ Somit kann auch die Rührerbewegung während der Trajektorienberechnung nicht berücksichtigt werden – der Rührer steht (während der Trajektorienberechnung) *stationär* im verwendeten Strömungsfeld. Dennoch werden unmittelbar am Rührerblatt große Geschwindigkeitskomponenten in der Richtung *durch* das Rührerblatt hindurch dargestellt (vgl. die linke Seite in Abbildung 5.10). Diese werden auch bei der Trajektorienberechnung verwendet. Dabei muß das Rührerblatt aber im Berechnungsgitter fest stehen. Wenn die Gasblasen dann (weitgehend) der Flüssigkeitsströmung folgen, steht ihnen das Rührerblatt (in der Berechnung) unüberwindlich im Weg.¹⁴

⁹„Bidirektionale Kopplung“ bezeichnet, daß sowohl die Einflüsse der flüssigen Phase auf die Gasblasen betrachtet werden als auch diejenigen in umgekehrter Richtung. Letztere wurden im hier entwickelten Modell vernachlässigt.

¹⁰Abschnitt 5.3.2 beschreibt, wie die Trajektorien in verschiedenen Bezugssystemen berechnet werden. Auch die oben erwähnten Impulsaustauschterme müßten dementsprechend speziell behandelt werden.

¹¹In modernen, nach Fertigstellung dieser Modellentwicklung veröffentlichten Programmversionen von FLUENT ist dies über die allgemein zugängliche Benutzerprogrammierschnittstelle machbar.

¹²Mit „FLUENT“ sind hier grundsätzlich die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Versionen 4.4 und 4.5 gemeint.

¹³Partikeltrajektorien können nur in einer „Momentaufnahme“ der Flüssigkeitsströmung („eingefrorene Strömung“) berechnet werden. (Die *instationäre* Trajektorienberechnung *während* einer instationären Strömungsberechnung ist inzwischen möglich, stand aber bei der hier beschriebenen Modellentwicklung nicht zur Verfügung.)

¹⁴Es gäbe an dieser Stelle nicht dieses Problem, wenn auch bei der Trajektorienberechnung der Rührer ständig mit der entsprechenden Geschwindigkeit rotierte. Dann könnte aber der Rührer im Modell gar nicht dargestellt werden (vgl. Fußnote 13). Seine Blätter wären ständig über den gesamten Winkel von 360° *delokalisiert*; und genauso wäre auch das Strömungsbild in ihrer Nähe räumlich über den gesamten Rotationsraum verteilt. Bestimmte Strömungsbe-

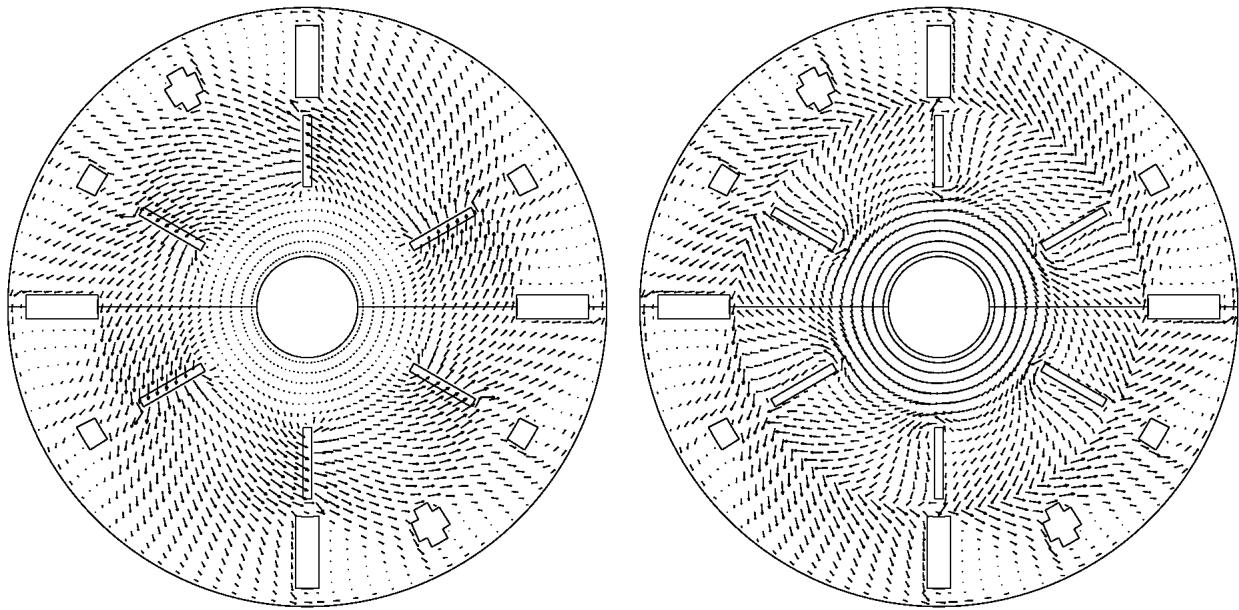


Abbildung 5.10: **Links:** Das von *FLUENT** berechnete und für die Blasenbahnberechnungen verwendete Geschwindigkeitsfeld in der Rührerebene; der Rührer dreht sich mit 180 Upm entgegen dem Uhrzeigersinn. **Rechts:** Dieselben Strömungsdaten, aber in der Form dargestellt, wie sie von der modifizierten Routine zur Blasenbahnberechnung verwendet werden: Die Tangentialgeschwindigkeit wird in Rührernähe relativ zum Rührer angegeben.

*Mit „FLUENT“ sind hier grundsätzlich die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Versionen 4.4 und 4.5 gemeint.

5.3.2.2 Lösung

Im Modell soll die Passage der Gasblasen am Rührerblatt und durch die Strömung in seiner Umgebung dargestellt werden. Deswegen soll der Rührer auch weiterhin bei der Trajektorienberechnung still im Berechnungsgitter stehen. So können aber nur sinnvolle Trajektorien entstehen, wenn sie in der Nähe des Rührers *relativ* zum Rührer gerechnet werden. Hierfür muß auch die Flüssigkeitsströmung *relativ* zum Rührer ausgedrückt werden.

Die Trajektorie muß also überall in Bezug auf das jeweils lokal gültige Bezugssystem (rotierend oder fest stehend) berechnet werden. Das hierbei zu verwendende Strömungsfeld der Flüssigkeit ist in der rechten Hälfte von Abbildung 5.10 dargestellt. Dies wurde für das hier entwickelte Modell im Simulationsprogramm implementiert.¹⁵

Beim Übergang zwischen den Bezugssystemen erhält die Trajektorie jeweils einen abrupten, trägheitsfreien Richtungswechsel (Knick; s. den folgenden Abschnitt). Dieser ist dadurch definiert, daß jeweils genau die Tangentialgeschwindigkeit des rotierenden Koordinatensystems im gegebenen Abstand von der Rotationsachse addiert oder subtrahiert wird.

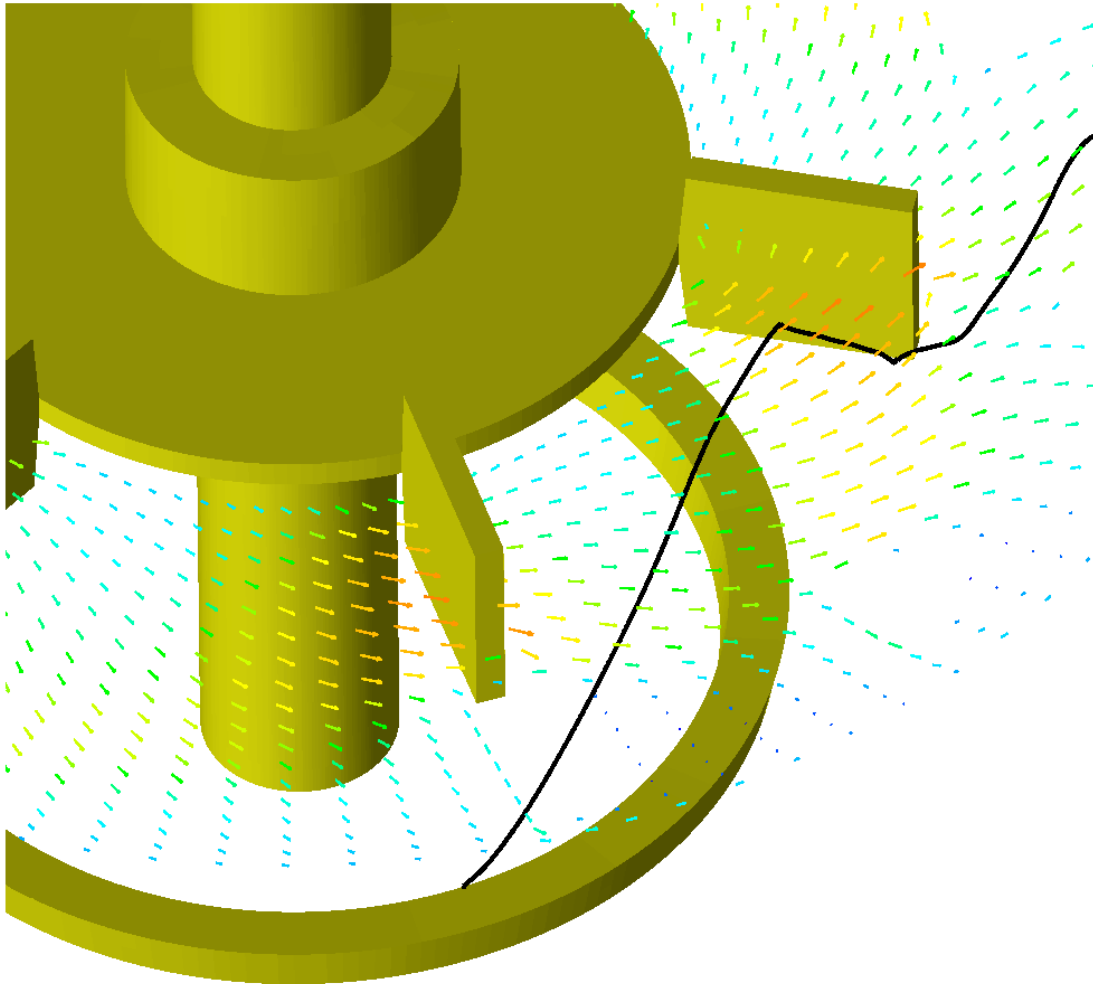


Abbildung 5.11: Ohne besondere Eingriffe produziert der Algorithmus für die Berechnung der Blasenbahnen ein unrealistisches Verhalten der Blasen am Rührerblatt: Die berechnete Flüssigkeitsströmung (Pfeildarstellung in der Rührerebene) versucht, die Blase durch das (während der Bahnberechnung fest stehende) Rührerblatt hindurchzudrücken. (Der schräg von oben dargestellte Rührer dreht sich im Gegenuhrzeigersinn;^{*} außerdem sind der Begaserring und eine Blasentrajektorie dargestellt.)

^{*}Bei der Trajektorienberechnung steht der Rührer, wie gesagt, still; er drehte sich aber während der Berechnung der Flüssigkeitsströmung in der angegebenen Richtung.

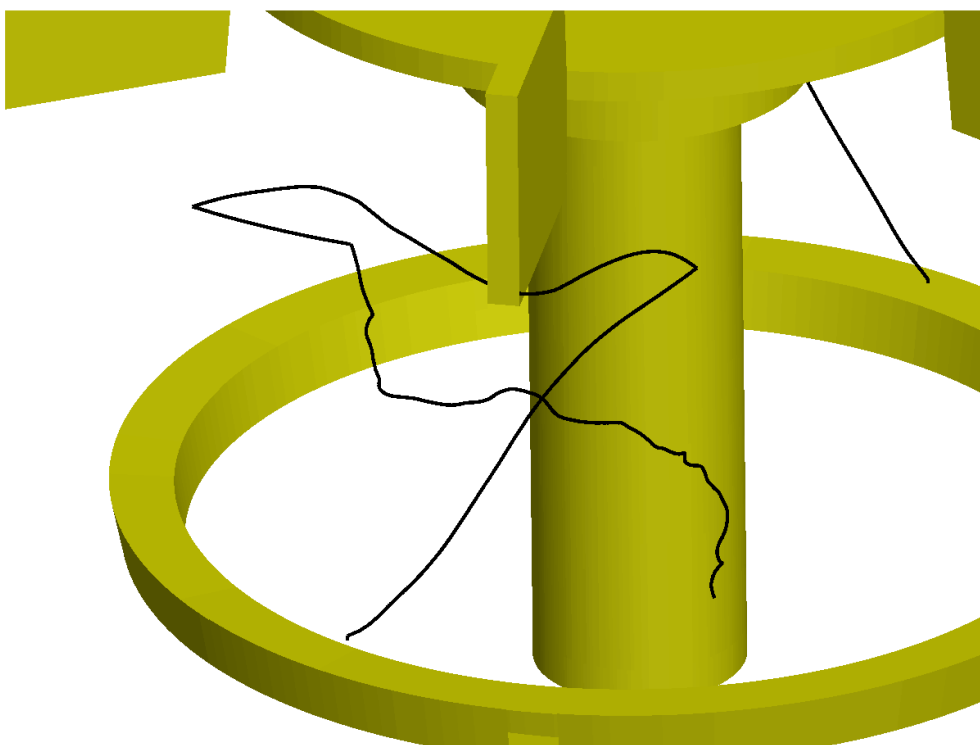


Abbildung 5.12: Der modifizierte Algorithmus zur Blasenbahnberechnung verändert die Blasenbahn in Rührernähe: Die Blase steigt zunächst vom Begaserring auf und folgt der Flüssigkeitsrotation im Gegenuhrzeigersinn; wenn sie (von unten) in den Bereich der Rührernähe eintritt, wird die Bahn umgeknickt und fortan relativ zum rotierenden Rührer gerechnet. Wenn die Blase den Nahbereich am Rührer (in radialer Richtung) wieder verläßt, wird die Trajektorie um einen variablen Winkel in Rotationsrichtung versetzt (um verschiedene Rührerstellungen zu simulieren, vgl. Anhang E.4.1 [S. 211]) und dann im fest stehenden Bezugssystem fortgesetzt. (Hier sind auch deutlich stochastische Turbulenzeinflüsse zu erkennen.)

5.3.2.3 Visualisierung

Abbildung 5.11 zeigt eine fälschlich mit dem absoluten Geschwindigkeitsfeld (linke Hälfte in Abbildung 5.10 [S. 101]) berechnete Blasenbahn. Man sieht, wie die Blasenbahn das Rührerblatt von hinten einholt, an ihm entlangwandert und es schließlich „überholt“. Somit laufen die Blasen trajektorien nie in korrekter Weise durch die lokalen Strukturen der Flüssigkeitsströmung an den Rührerblättern (Wirbelschlepe „hinter“ der Außenkante des Rührerblattes¹⁶). Dies ließe sich auch nicht dadurch ändern, daß man die Rührerblätter im Modell für die Partikeltrajektorien durchlässig machte.

reiche, wie z.B. turbulenzreiche Wirbelschleppen hinter den Rührerblättern, könnten nie aufgelöst werden – wertvolle Information würde ungünstig vernichtet.

¹⁵Der Autor dankt Herrn Dr.-Ing. Markus Braun (Fluent Deutschland GmbH, Darmstadt) für die Freigabe eines unveröffentlichten Quelltextabschnittes aus dem verwendeten Simulationsprogramm (FLUENT). Ohne diesen Beitrag wäre diese Arbeit nicht in ihrer vorliegenden Form zustande gekommen.

¹⁶Die Lage der erwähnten Wirbelschlepe, durch die in der Realität ein großer Anteil aller Gasblasen läuft, ist in der rechten Hälfte von Abbildung 5.9 (Seite 98) zu sehen. Man beachte aber, daß dort der Rührer im Uhrzeigersinn rotiert!

Abbildung 5.12 zeigt eine Blasentrajektorie, die mit den korrigierten Geschwindigkeitsdaten (rechte Hälfte in Abbildung 5.10, auf Seite 101) berechnet wurde: Beim Eintritt in den Bereich des rotierenden Koordinatensystems wird die Bahn definiert abgelenkt; anschließend strömt die Blase zusammen mit der umgebenden Flüssigkeit korrekt auf das Rührerblatt zu und darum herum. Sie passiert den Bereich der erwähnten Wirbelschlepe, bevor sie das rotierende Bezugssystem wieder verläßt, wobei ihre Trajektorie einen zweiten Knick erfährt. (Ein dritter und letzter Knick wird im Anhang E.4.1 (Seite 211) erklärt.)

5.3.3 Blasengröße

Die wichtigste Eigenschaft der Blasen für die Berechnung ihrer Bewegung ist ihr Durchmesser. Aus ihm wird, nach einfachen Widerstandsgesetzen für die Umströmung sphärischer Partikeln, der Impulsaustausch zwischen Gas und Flüssigkeit errechnet. (Wie in Abschnitt 2.2.3.2 [S. 18] diskutiert, verhalten sich Gasblasen in biotechnologischen Fermentationsbrühen wie rigide und [näherungsweise] sphärische Partikeln.)

5.3.3.1 Blasenzerteilung

In biotechnologischen Medien ist Koaleszenz nur sehr schwach ausgeprägt; der bestimmende Mechanismus für die Blasengröße ist die Blasenzerteilung, die vorwiegend in den Bereichen höchster Turbulenz, unmittelbar hinter den Rührerblättern, geschieht.

In Abschnitt 4.1.4.2 (Seite 63) wird hergeleitet, wie die maximale stabile Blasengröße von der lokalen Turbulenzenergiedissipation ϵ abhängt. Dieser Zusammenhang wurde im Simulationsprogramm implementiert: Während der Trajektorienberechnung wird laufend kontrolliert, ob die Blase entsprechend der lokal herrschenden Energiedissipation ϵ zerteilt werden müßte. Ist diese Bedingung erfüllt, wird (in der Berechnung) das Volumen der Blase halbiert, und der Blasendurchmesser wird dementsprechend korrigiert. Außerdem wird ein mit jeder Blasentrajektorie geführter Anzahlparameter n_b verdoppelt. Mit diesem Anzahlparameter werden alle auf die Blase bezogenen Berechnungen für den Stoffaustausch multipliziert, weil die Trajektorie von jeder Zerteilung an für eine verdoppelte Anzahl von Blasen steht.

5.3.3.2 Zufallsereignisse

Die Zerteilung von Blasen im turbulenten Strömungsfeld ist kein streng deterministischer Vorgang: Ob eine Blase im Turbulenzfeld tatsächlich zerteilt wird, hängt (neben dessen Intensität) von der Verweildauer der Blase im Turbulenzfeld und von einer gewissen Zufallskomponente ab. Theoretisch wäre es möglich, beide Einflußgrößen in der Simulation zu berücksichtigen; aus Zeitgründen mußte jedoch davon abgesehen werden. Mehrere Untersuchungen der dynamischen Vorgänge bei der Blasenzerteilung durch Turbulenz existieren [124, 328]; die Integration des mathematischen Modelles in die Simulationen wäre allerdings aufwendig.

Weiterhin sind die (zumeist zwei) Fragmente, in die eine Blase im Turbulenzfeld zerteilt wird, nur selten wirklich gleich groß. Auch dies ist eine vereinfachende Annahme aus Gründen der Praktikabilität. Für ungleich große Fragmente müßten jeweils separate Trajektorien vom Punkt der Blasenzerteilung aus berechnet werden. Dies würde aber Eingriffe in das Simulationsprogramm erfordern, die über die Möglichkeiten des Benutzers an der dokumentierten Programmierschnittstelle hinausgehen.

5.3.3.3 Parameterbestimmung

In Gleichung 4.1 - 35 (Seite 63) ist als Parameter die kritische Weberzahl $We_{krit.}$ enthalten. Literaturwerte für diese Zahl erstrecken sich über mehr als eine dekadische Größenordnung [79]. Außerdem ist deren Verwendung unmöglich, solange die Oberflächenspannung σ nicht genau bekannt ist.¹⁷ Für die durchgeführten Simulationen mußte deswegen auf andere Weise ein eigener Wert für den unbekannten Parameter $We_{krit.} \cdot \sigma$ bestimmt werden. Dazu wurde zunächst aus Füllstandsmessungen am Reaktor der Gasvolumenanteil ε_g im gesamten Reaktionsvolumen (bei definierten Betriebsparametern) bestimmt. Mit dem Gasvolumenstrom \dot{V}_g ergibt sich daraus die (mittlere) Gasblasenverweilzeit $\tau_{Bl.}$ im Reaktionsvolumen:

$$\tau_{Bl.} = \frac{V \cdot \varepsilon_g}{\dot{V}_g} \quad (5.3 - 1)$$

In Simulationen des Gasphasenverhaltens unter entsprechenden Betriebsbedingungen wurde der Parameter $We_{krit.} \cdot \sigma$ nun so variiert, daß die simulierte (mittlere) Gasblasenverweilzeit der aus Meßwerten berechneten entsprach. So ergab sich für das untersuchte System ein Wert von $We_{krit.} \cdot \sigma = 6,85 \frac{mN}{m}$. Die kritische WEBERZahl $We_{krit.}$ liegt im Bereich um 1 [126, 286]; die Oberflächenspannung der Fermentationsbrühe bei 37°C hat also ungefähr denselben Wert von $\sigma \approx 7 \frac{mN}{m}$. Reines Wasser hat bei 20°C etwa den zehnfachen Wert; für eine warme, tensidhaltige Fermentationsbrühe ist der gefundene Wert also sehr plausibel.

Die Oberflächenspannung und die kritische WEBERZahl sind (temperaturabhängige) Stoffparameter – sie sind also beliebig von kleinen auf große Reaktoren übertragbar. Wenn eine Maßstabsvergrößerung untersucht und simuliert werden soll, genügt es deswegen, für das gegebene Stoff- und biologische System ein einziges Mal (im Laborfermenter) diese Parameter (bzw. deren Produkt) zu ermitteln.

5.3.4 Diskussion

Das hier beschriebene Modell erlaubt eine realitätsnahe Vorhersage der Gasblasenströmung in einem begasten Rührkessel. (An bestimmten Stellen waren Veränderungen bzw. Anpassungen der numerischen Algorithmen notwendig, wie im Anhang in Abschnitt E.4.2 [S. 211] dargestellt.)

Lediglich drei wohldefinierte Aspekte werden vernachlässigt. Der erste (Entkopplung der Mehrphasenströmung im Modell) wurde bereits in Abschnitt 5.3.1.2 (Seite 99) diskutiert. Im folgenden wird für zwei weitere Aspekte diskutiert, in welchen Fällen sie ohne bedeutende Fehler vernachlässigt werden können.

5.3.4.1 Blaseneintrag

Wird eine Flüssigkeit mit einem Rührer nahe an der freien Oberfläche stark gerührt, so entstehen durch die Turbulenz nahe der Oberfläche Gasblasen, die teilweise von der Strömung in die Tiefe transportiert werden [203]. Diese Blasen tragen in gleicher Weise zum Sauerstoffeintrag bei wie diejenigen, die vom Begaser freigesetzt werden. Sie können aber im Modell nicht erfaßt werden, solange ihre Bildungsrate nicht bekannt ist.

Sofern bekannt ist, welchem Gasstrom der Blaseneintrag entspricht, und welche Größe die eingetragenen Blasen haben, läßt sich das Phänomen auf dieselbe Weise im Modell integrieren wie der Begaserring. Diese

¹⁷Die Bestimmung der Oberflächenspannung für das untersuchte Stoff- und biologische Testsystem war aus sicherheitstechnischen Gründen unmöglich. Der verwendete Mikroorganismus *Klebsiella pneumoniae* ist ein potentieller Krankheitserreger; deshalb muß bei der Arbeit jede Aerosolbildung von lebenden Kulturen vermieden werden.

Information ist aber kaum verfügbar, so daß die von der Oberfläche eingetragenen Blasen vernachlässigt werden müssen.

Ein Rührer, der nahe an der freien Oberfläche sitzt und dort viele Gasblasen produziert, hat einen relativ niedrigen Wirkungsgrad. Deswegen sind solche Fälle selten. Er produziert auch einen lokalen, schwer regulierbaren Sauerstoffeintrag. In mikroaeroben Prozessen, in denen auch Homogenität gefordert ist, muß dieser Zustand besonders vermieden werden. Somit ist es ein vernachlässigbarer Fehler, ihn auch im hier entwickelten Modell zu übergehen.

5.3.4.2 Gaskavitäten

Die Gasblasen haben in der Realität Einfluß auf die Flüssigkeitsströmung. Am Rührer bilden sich Gaskavitäten hinter den Rührerblättern; diese mindern die Pumpkapazität und den Leistungseintrag des Rührers.¹⁸ Dieser Effekt wird aber nur oberhalb eines bestimmten Gasvolumenstromes deutlich (vgl. Abschnitte 2.2.5 und 2.2.6 sowie Abbildung 2.4 auf Seite 20).

In generell schwach begasten Prozessen (ohne Gaskavitäten am Rührer) ist diese Begrenztheit des Modelles also vernachlässigbar. Dies sind z.B. Prozesse, die wegen geringer Zelldichten und Sauerstoffaufnahmeleistungen keiner besonders intensiven Begasung bedürfen (z.B. Zellkulturen). Ebenfalls bedeutend sind hier solche Prozesse, in denen absichtlich nur eine begrenzte Sauerstoffversorgung der suspendierten Mikroorganismen (oder Zellen) realisiert wird (mikroaerobe Prozesse, vgl. Abschnitt 3.1.4, auf Seite 35). Hier ist die Hauptaufgabe des Rührers eine möglichst homogene Vermischung des Reaktorinhaltes, weil überall im Reaktor dieselbe (geringe) Sauerstoffkonzentration erreicht werden soll. (Hierzu kann auch angestrebt werden, die Gasblasen und den von ihnen ausgehenden Sauerstoffeintrag möglichst gleichmäßig im Reaktor zu verteilen.) Für solche Prozesse ist das hier beschriebene Modell vorrangig entwickelt worden.

5.3.4.3 Ansätze für Koaleszenz

Im folgenden soll kurz diskutiert werden, wie auch *Blasenkoaleszenz* in das vorliegende Modell integriert werden könnte.¹⁹

Blasenabstände. Jede Blasentrajektorie entspricht einem festgelegten Gasvolumenstrom. Sie kann also als ein, in Blasen aufgeteilter, konstanter Gasstrom entlang ihres Verlaufes gedacht werden. Nimmt man aus dieser strömenden Blaskette eine Momentaufnahme, so erkennt man unterschiedliche Abstände zwischen den Blasen. Diese Abstände sind um so größer, je schneller die Blasen sich bewegen. An Stellen, wo die Blasen sehr langsam sind, holen sie u.U. einander ein und berühren sich, so daß sie (in dieser Modellvorstellung) koaleszieren müssen.

Wirksamkeit. Diese einfache Modellvorstellung wurde versuchsweise im hier entwickelten Modell integriert. Damit konnte z.B. erreicht werden, daß Blasen, die an der Stagnationsstelle hinter dem Rührerblatt festsäßen, durch Koaleszenz im Modell so weit an Größe und Auftrieb gewannen, daß sie nie zum absoluten Stillstand (relativ zum Rührer) kamen. Dadurch konnte die Anzahl von Trajektorien, die im Modell wegen Stillstandes abgebrochen wurden, drastisch gesenkt werden.

¹⁸In aeroben Prozessen in der Biotechnologie ist eine hohe Sauerstoffeintragsleistung die wesentliche Aufgabe des Rührers; diese ist vorwiegend an den Leistungseintrag und die Energiedissipation im Reaktorinhalt gekoppelt (vgl. Abschnitt 2.3.3.1, auf Seite 26).

¹⁹Diese Ansätze wurden im Rahmen der hier dokumentierten Arbeiten *nicht* praktisch umgesetzt. Die Überlegungen sind hier wiedergegeben, um eine mögliche Richtung zur Fortentwicklung des bestehenden Modells anzudeuten.

Unbekannte. Der neu eingeführte Mechanismus muß mit einer weiteren Proportionalitätskonstante „kalibriert“ werden. Im Modell wird, ausgehend von jedem Loch des Begaserringes, eine frei wählbare Anzahl von Trajektorien (mit jeweils eigenen, stochastisch verteilten Turbulenzeinflüssen) gerechnet. Wegen der unterschiedlichen Zufallseffekte der Turbulenz kann so daß Strömungsfeld gleichmäßiger und realistischer mit Trajektorien gefüllt werden.²⁰ Je mehr Trajektorien berechnet werden, desto geringer ist der Gasstrom, der mit jeder einzelnen Trajektorie assoziiert ist.

In der praktischen Anwendung dieser Koaleszenzmodellierung sollte der Einfluß des *Gasstromes je Trajektorie* aus dem Modell eliminiert werden. Damit wird aber eine ersetzende Proportionalitätskonstante nötig. Deren Wert kann nur aus Meßreihen bestimmt werden, die (integrale) Gasvolumenanteile $\bar{\varepsilon}_g$ in Abhängigkeit verschiedener anderer Parameter wiedergeben. (Zum Vorgehen vgl. Abschnitt 5.3.3.3, auf Seite 105.) Solche Meßreihen standen bei der Modellentwicklung und -anwendung in der vorliegenden Arbeit nicht zur Verfügung. Deswegen wurde auf die Anwendung dieses Teilmodelles zur Blasenkoaleszenz verzichtet.

Gasvolumenanteil. Während der Berechnung der Gasblasentrajektorien werden die Gasblasenverweilzeiten in jedem einzelnen Volumenelement aufsummiert. Mit dem – jeder Trajektorie zugeordneten – Gasvolumenstrom kann so für jedes Kontrollvolumen ein (lokaler) *Gasvolumenanteil* ε_g bestimmt werden.

Bei späteren Trajektorienberechnungen könnte diese Information ausgewertet werden. Je höher der lokale Gasvolumenanteil, desto höher die Koaleszenzwahrscheinlichkeit.

Der genaue Zusammenhang zwischen diesen Größen müßte aber ebenfalls erst in ausführlichen Experimenten ermittelt werden, bevor dieser Ansatz anwendbar wäre. Deswegen wurde auch er im beschriebenen Modell nicht verwendet.

5.3.5 Zusammenfassung

Die disperse Gasphasenströmung im begasten Rührkessel wird nach der (EULER/-) LAGRANGE-Methode simuliert. Dabei werden einzelne Blasentrajektorien in einem „eingefrorenen“ Strömungsfeld der Flüssigkeit berechnet. Durch das Einbeziehen von Turbulenzeinflüssen und das Rechnen *vieler* Trajektorien verteilt sich die disperse Gasphase im Modell wie in der Realität mehr oder weniger gleichmäßig im Flüssigkeitsraum.

Da das Strömungsfeld der Flüssigkeit aus einer direkten Rührersimulation entnommen wird, mußte eine spezielle Trajektorienberechnung im inneren, ursprünglich rotierenden Teilgebiet implementiert werden. (Berechnung der Bewegung *relativ* zu dem [mit dem Rührer] rotierenden Bezugssystem; Einbeziehung von Zentrifugal- und CORIOLISKräften.)

Die grundsätzlich gegebene Möglichkeit, den Einfluß der dispersen Gasphasenströmung auf das Strömungsfeld der Flüssigkeit bei dessen Berechnung zu berücksichtigen, wurde dabei aufgegeben. Sie wieder aufzunehmen, ist grundsätzlich möglich, erfordert aber zusätzliche Programmodifikationen und ist bei der Simulation *schwach* begaster Bioprozesse in Rührkesseln verzichtbar.

Während der Trajektorienberechnung wird ein einfaches Modell zur Behandlung der turbulenzabhängigen *Blasenzerteilung* verwendet, um die sich ergebende Blasengrößenverteilung vorherzusagen und im weiteren Modell korrekt zu berücksichtigen. Abschließend werden klar definierte Anwendungsgrenzen des Modells diskutiert und Ansätze zur Erweiterung des Modells auf koaleszenzfördernde Stoffsysteme aufgezeigt.

²⁰Das Ergebnis entspricht dann einem Langzeitmittel für die räumliche Verteilung des Gasvolumens [“hold-up”] im Reaktor.

5.4 Stoffaustausch und -transport

Aufbauend auf den bis hierher ermittelten Strömungsfeldern für Flüssigkeit und disperse Gasphase soll nun der lokale Stoffeintrag aus der Gasphase in die Flüssigkeit modelliert werden. Weiterhin wird dieser Stoffeintrag gegen Stofftransport und Stoffverbrauch bilanziert, so daß sich ein *stationäres* Konzentrationsprofil in der Simulation ergeben kann.

5.4.1 Stoffaustausch

Die mathematische Beschreibung des Stoffaustausches an einer Phasengrenze (zwischen Gas und Flüssigkeit) wurde in Abschnitt 2.3 (Seite 21) gegeben (s. Gleichung 2.3 - 11 auf Seite 22). Es werden die (lokalen) Sauerstoffkonzentrationen in Gas ($c_g \mapsto c_l^*$) und Flüssigkeit (c_l) sowie die Größe A der Phasengrenzfläche im Kontrollvolumen und der („flüssigkeitsseitige“) Stoffaustauschkoeffizient β_l benötigt. Diese drei sollen in den folgenden Abschnitten einzeln mit Bezug auf das hier entwickelte Modell behandelt werden.

5.4.1.1 Grenzflächengröße

Jede Blasentrajektorie ist mit einem gewissen (kontinuierlich zu denkenden) Gasmassenstrom \dot{m}_g verknüpft. Aus diesem und der Verweilzeit τ_g der Blase (-ntrajektorie) in einem einzelnen Kontrollvolumen ergibt sich eine bestimmte konstante Gasmenge $m_g = \dot{m}_g \cdot \tau_g$, die sich nach der Modellrechnung ständig im betrachteten Kontrollvolumen aufhält.²¹ Mit der Masse $m_{Bl.}$ und der Oberfläche $O_{Bl.}$ einer einzelnen Blase ergibt sich ein Betrag für die Größe der Phasengrenzfläche A im Kontrollvolumen:

$$A = O_{Bl.} \cdot \frac{m_g}{m_{Bl.}} \quad (5.4 - 2)$$

Wenn die Blase (durch Turbulenzeinflüsse) im Modell zerteilt wurde, ist noch mit dem *Blasenanzahl*parameter n_b zu multiplizieren, der aktuell mit der Trajektorie verknüpft ist (vgl. Abschnitt 5.3.3.1, auf Seite 104).

Wenn mehrere Blasentrajektorien durch dasselbe Kontrollvolumen gehen, werden deren Beiträge zur Phasengrenzfläche im Kontrollvolumen aufsummiert.

5.4.1.2 Austauschkoeffizient

In Abschnitt 4.1.3.3 (Seite 62) wurde gezeigt, daß Gleichung 4.1 - 30 [S. 62] den linearen Stoffaustauschkoeffizienten β_l für die relativ kleinen Gasblasen in biotechnologischen Medien am besten beschreibt. Die Blasen sind erheblich kleiner als die großen, energiereichen Turbulenzwirbel; deswegen ist β_l nur von ϵ und nicht von k abhängig:

$$\beta_l = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \left(\frac{D}{\nu} \right)^{b_D} \cdot \sqrt[4]{\nu \cdot \epsilon} \quad (5.4 - 3)$$

KARAMANEV *et al.* haben gezeigt, daß sich Luftblasen in („kontaminiertem“) Wasser bis zu einem Durchmesser von mehr als 0,5mm wie starre Kugeln verhalten [148]. (Vgl. Abschnitt 4.3.3.2, auf Seite 82.) In der Validierung des hier entwickelten Modelles wird sich zeigen, daß im untersuchten Reaktor Blasen mit Durchmessern *unter* 1 mm absolut vorherrschten (s. Abschnitt 7.1.2

²¹Dies bedeutet nicht, daß der Gasanteil im Kontrollvolumen still steht. Es bedeutet nur, daß die Gasmenge im Kontrollvolumen konstant ist, weil Zu- und Abstrom („entlang“ der Blasentrajektorie) einander ständig die Waage halten.

auf Seite 144). Die Blasen sind also kleine, rigide Kugeln mit immobiler Phasengrenze; deswegen wird für b_D der Wert $\frac{2}{3}$ angesetzt.

Es bleibt eine Proportionalitätskonstante zu bestimmen. Die theoretische Herleitung ergibt den Wert $\frac{2}{\sqrt{\pi}} \approx 1,128$. Die angegebene Gleichung ist in der Literatur vielfach angewendet worden; aus integralen Messungen wurde hierbei die Proportionalitätskonstante auf den wesentlich geringeren Wert von 0,13 bestimmt [52, 150]. Dies mag ein Effekt der Anpassung des Exponenten b_D an der SCHMIDTzahl $Sc = \frac{\nu}{D}$ sein. Weiterhin wurde der Literaturwert über *integrale* Messungen bestimmt: Der Leistungseintrag des Rührers wurde auf das gesamte Reaktorvolumen oder auf das vom Rührer bei seiner Rotation überstrichene Volumen bezogen.

Die Bestimmung eines eigenen Wertes für die Proportionalitätskonstante ist in Abschnitt 7.1.3.1 (Seite 145) erklärt.

5.4.1.3 Sauerstoffkonzentrationen

Mit den Werten für A und β_l , die in den vorigen Abschnitten bestimmt wurden, kann nun (nach Gleichung 2.3 - 11 auf Seite 22) während der Trajektorienberechnung der lokale Stoffstrom von Sauerstoff aus der Gasphase in die Flüssigkeit bestimmt werden. Dabei werden Werte für die Sauerstoffkonzentration in Gas (c_g) und Flüssigkeit (c_l) benötigt.

Die Sauerstoffkonzentration c_g in der Gasblase ist anfangs durch die Randbedingungen der Gaszufuhr vorgegeben. Während der Bewegung durch die Flüssigkeit verliert die Blase Sauerstoff an die Flüssigkeit; dies wird bei der Trajektorienberechnung über der Zeit bilanziert (vgl. Abbildung 4.4, auf Seite 83).²² So beschreibt das Modell genau die Sauerstoffverarmung der Gasblasen auf ihrem Weg, wobei auch die Verminderung der Blasen*größe* (mit ihren Folgen für den Blasenaufrstieg) realisiert wird. Die veränderte Sauerstoffkonzentration wird außerdem bei der Bestimmung des jeweils lokalen Sauerstoffübergangs im nächsten Zeitschritt der Trajektorie berücksichtigt.

5.4.2 Gleichgewichtseinstellung

Die Sauerstoffkonzentration c_l in der Flüssigkeit ergibt sich schließlich aus einem Gleichgewicht der folgenden Mechanismen:

- Lokaler Sauerstoffeintrag (aus den Gasblasen);
- (lokaler) Sauerstoffverbrauch (durch suspendierte Zellen);
- Stofftransport durch die Strömung (Konvektion);
- Stofftransport durch Diffusion und Dispersion.²³

Diese Mechanismen des Stofftransportes sind alle von der lokalen Sauerstoffkonzentration abhängig, die sie wiederum selbst beeinflussen. Die Gleichgewichtseinstellung zwischen den letzten drei Punkten entspricht in der Simulation der Lösung einer Differentialgleichung für eine Stoffbilanz. Konvektiver und diffusiver (dispersiver) Stofftransport werden dabei von einer normalen NAVIER-STOKES-Gleichung beschrieben, wie sie in Abschnitt 4.2.1.1 erläutert ist (Gleichung 4.2 - 39, auf Seite 66).

²²Auf diese Weise kann das Modell auch den Transport von Sauerstoff in kleinen, sehr lange zirkulierenden Gasblasen beschreiben; sie nehmen in sauerstoffreichen Zonen im Reaktor Sauerstoff auf und geben ihn an anderer Stelle wieder an die Flüssigkeit ab.

²³Dispersion verhält sich mathematisch analog zur Diffusion, wobei der Transportkoeffizient von der lokalen Turbulenz abhängt und dort, wo Turbulenz herrscht, den (laminaren) Diffusionskoeffizienten ganz überwiegt.

Der (lokale) Sauerstoffverbrauch ist auf jeden Fall konzentrationsabhängig, weil er mit sinkender Konzentration ebenfalls gegen null gehen muß.²⁴ Er kann als ein zusätzlicher, von der Bilanzgröße (Sauerstoffkonzentration) abhängiger Senkenterm $-s_v$ (negative Quelle) in die NAVIER-STOKES-Gleichung integriert werden.

Für jedes Kontrollvolumen wird eine solche NAVIER-STOKES-Gleichung gelöst. Dabei wird außerdem, als zusätzlicher Quellterm, der Stoffübergang von den Gasblasen in die Flüssigkeit eingerechnet. Von jeder Trajektorie werden, bei deren Berechnung, in jeder berührten Zelle (Kontrollvolumen) solche Quellterme bestimmt. Wenn mehrere Trajektorien dieselbe Zelle berühren, werden die einzelnen Quellterme aufsummiert.

5.4.2.1 Iterativer Algorithmus

Es wurde erklärt, daß die einzelnen Mechanismen, die (netto) Sauerstoff in ein Kontrollvolumen hineinbringen oder aus ihm entfernen, nach und nach ein Gleichgewicht miteinander erreichen. Dabei hängt das Ausmaß jedes einzelnen Mechanismus von der (aktuellen) lokalen Sauerstoffkonzentration ab. Für den konvektiven und den dispersiven Stofftransport ist diese Wechselwirkung in der NAVIER-STOKES-Gleichung direkt enthalten. Auch für den Sauerstoffverbrauch ist dies gegeben, wenn der Senkenterm direkt in seiner konzentrationsabhängigen Form in die Gleichung eingesetzt wird.

Die Quellterme vom Stoffübergang aus den Gasblasen in die Flüssigkeit werden aber nur während der Berechnung der Gasblasentrajektorien bestimmt. Sie sind also während der (anschließenden) Lösung der aufgestellten NAVIER-STOKES-Gleichungen in jedem einzelnen Kontrollvolumen *konstant*. Dies ist aber nicht sinnvoll: Wenn die Gelöstsauerstoffkonzentration c_l sich ändert, ändert sich (gemäß Gleichung 2.3 - 11 [S. 22]) auch der Stoffaustauschterm. Dies muß in eine sinnvolle Berechnung eingehen, um korrekte Konzentrationswerte zu erhalten.

Die Stoffaustauschterme müssen also während der Lösung der NAVIER-STOKES-Gleichungen für alle einzelnen Kontrollvolumina ständig aktualisiert werden. Dies erfordert eine rechenintensive iterative Lösung. Darin werden immer abwechselnd...

1. Trajektorien in hinreichender Zahl,²⁵ und damit neue Austauschterme, berechnet, und...
2. die NAVIER-STOKES-Gleichungen (unter Anwendung der aktualisierten Stoffaustauschterme) erneut gelöst.

Dies ist der gängige Algorithmus, mit dem gewöhnlich Impuls-, Wärme- und Stoffaustausch in Simulationen nach dem EULER-LAGRANGE-Modell eingebracht werden.

5.4.2.2 Optimierung des Algorithmus

Die numerische Stabilität der Berechnung erfordert es, die Stoffaustauschterme *häufig* zu aktualisieren.²⁶ Wenn auch stochastische Turbulenzeinflüsse auf die Trajektorien eingerechnet werden,

²⁴Das mathematische Modell für den Sauerstoffverbrauch („Zehrung“) in Abhängigkeit von der (lokalen) Sauerstoffkonzentration wird weiter unten genauer diskutiert (siehe Abschnitt 5.4.6, auf Seite 116).

²⁵Da stochastische Turbulenzeinflüsse auf die Blasenbewegung in der Trajektorienberechnung berücksichtigt werden, müssen jedesmal *viele* Trajektorien berechnet werden, damit von Iteration zu Iteration keine massive (und unrealistische) Veränderung der räumlichen Gasphasenverteilung im numerischen Modell passiert. (Vgl. auch Abschnitt 5.3.1.1, auf Seite 99).

²⁶Sonst entfernt sich die lokale Konzentration im Lauf der Iterationen zu weit vom physikalisch sinnvollen Ergebnis, bevor die Austauschterme (in einer erneuten Trajektorienberechnung) auf die veränderte Konzentration reagieren. Das würde die Konvergenz auf ein physikalisch sinnvolles Endergebnis verhindern; statt dessen würde eine Oszillation um diesen Wert sich immer weiter aufschaukeln.

müssen außerdem jedesmal sehr *vielen* Trajektorien berechnet werden. Andernfalls wechselt die räumliche Verteilung der Gasphase (und damit der lokalen Stoffaustauschterme) zu stark von einer Iteration zur nächsten. (Auch dies würde die Konvergenz der Gleichgewichtseinstellung zwischen den Stofftransportmechanismen²⁷ zu stark mit ständigen stochastischen Schwankungen der Stoffaustauschterme behindern.)

Ausgangsgrößen... Diese Schwierigkeiten werden auf folgende Weise umgangen: Bei der Trajektorienberechnung werden nicht mehr Quellterme für den gelösten Sauerstoff berechnet. Statt dessen werden für jedes Kontrollvolumen die dafür nötigen Größen unmittelbar gespeichert. Dies sind:

- Der Sauerstoffgehalt der Blase;
- die Größe der Blase, die also ihre Oberfläche bestimmt;
- der lineare Stoffaustauschkoeffizient an der Blasenoberfläche;
- die Verweilzeit der Blase im Kontrollvolumen und...
- der Anzahlparameter für Trajektorien für bereits zerteilte Blasen.

Eine besondere Behandlung ist nötig, wenn mehrere Trajektorien (in der Berechnung nacheinander) dasselbe Kontrollvolumen berühren: Die Beiträge der einzelnen Blasen (-trajektorien) zum gesamten lokalen Gasvolumenanteil ε_g werden in jeder einzelnen Zelle aufsummiert.

Mittelung Der lineare Stoffaustauschkoeffizient β_l ist nur von der lokal herrschenden Turbulenz abhängig (turbulente Energiedissipation ϵ , vgl. Gl. 5.4 - 3, auf Seite 108). Er hat also innerhalb eines Kontrollvolumens für jede Trajektorie denselben Wert.

Die *Blasengröße* wird nicht direkt gespeichert, sondern statt ihrer die *Blasenoberfläche* $O_{Bl.}$. Diese Größe muß (in geeigneter Art) über alle Trajektorien gemittelt werden, die das betrachtete Kontrollvolumen berühren:

Der Beitrag einer einzelnen Blasentrajektorie zum gesamten Stoffaustausch (in einem Kontrollvolumen) ist [u.a., s. Abschnitt 5.4.2.2] proportional zur Verweilzeit der Blase (-ntrajektorie) im Volumenelement. Deswegen wird bei der Mittelung der Blasenoberfläche (über alle Trajektorien, die das Kontrollvolumen berühren) jeweils nach der Verweilzeit der einzelnen Trajektorie im Volumenelement *gewichtet*.

Diese Überlegung wird auf gleiche Weise auf die Sauerstoffkonzentration in der Gasphase übertragen.

Weitere Gewichtung Jede Blasentrajektorie steht für denselben Gasvolumenstrom. Deswegen ist der Beitrag jeder Trajektorie zum Stoffaustausch proportional zu (1.) der Verweilzeit (im Bilanzvolumen, vgl. den vorigen Abschnitt) und (2.) der spezifischen (auf das Blasenvolumen bezogenen) Blasenoberfläche $\frac{O_{Bl.}}{V_{Bl.}}$. Letztere ist proportional zum Kehrwert $\frac{1}{d_{Bl.}}$ des Blasendurchmessers, der wiederum proportional zur dritten Wurzel $\sqrt[3]{V_{Bl.}}$ des Blasenvolumens ist:

$$\frac{O_{Bl.}}{V_{Bl.}} \sim \frac{1}{d_{Bl.}} \sim \frac{1}{\sqrt[3]{V_{Bl.}}} \quad \left(= V_{Bl.}^{-\frac{1}{3}} \right) \quad (5.4 - 4)$$

²⁷Siehe Abschnitt 5.4.2, auf Seite 109.

Für eine von Turbulenzeinflüssen bereits „zerteilte“ Blase (-ntrajektorie; vgl. Abschnitt 5.3.3.1, auf Seite 104) ist das Volumen $V_{\text{Bl.}}$ einer Einzelblase *umgekehrt* proportional zur Blasenanzahl n_b , in die die Ausgangsblase bereits zerteilt wurde. (Jede Trajektorie steht für denselben Gasmengenstrom und hat denselben Anfangsdurchmesser $d_{\text{Bl.,0}}$ der Ausgangsblase [für $n_b = 1$].) Daher gilt in Fortsetzung von Gleichung 5.4 - 4:

$$\frac{O_{\text{Bl.}}}{V_{\text{Bl.}}} \sim V_{\text{Bl.}}^{-\frac{1}{3}} \sim n_b^{\frac{1}{3}} \quad (= \sqrt[3]{n_b}) \quad (5.4 - 5)$$

Mit dieser Proportionalität wird *zusätzlich* gewichtet, wenn die (mittlere) Sauerstoffkonzentration c_g in der Gasphase für jedes einzelne Kontrollvolumen aus der Trajektorienberechnung ermittelt wird.

5.4.3 Praktische Ausführung

Mit dem beschriebenen Algorithmus (vgl. Abschnitt 5.4.2.2, auf Seite 110) ist es möglich, mit erheblich verringertem Aufwand an Rechenzeit realistische Simulationsrechnungen durchzuführen. Das Ausmaß *aller* Stofftransportmechanismen (vgl. Abschnitt 5.4.2, auf Seite 109) folgt jetzt unmittelbar (von einer Iteration zur nächsten) der sich verändernden Gelöstsauerstoffkonzentration, ohne daß neue Trajektorien (und damit neue Stoffaustauschterme) berechnet werden müssen. Dies ermöglicht eine rasche und sichere Konvergenz der iterativen Lösung für die aufgestellte NAVIER-STOKES-Gleichung (vgl. Abschnitt 5.4.2, auf Seite 109).

5.4.3.1 Neuberechnung für die Gasphase

Nur ein Phänomen erfordert weiterhin eine regelmäßige Aktualisierung (also Neuberechnung) der Blasentrajektorien: Dadurch, daß sich (bei der diskutierten Gleichgewichtseinstellung) die Sauerstoffkonzentration in der Flüssigkeit ändert, ändert sich auch der Stoffübergang zwischen Blasen und Flüssigkeit. Dies verändert wiederum die zeitliche Veränderung der Sauerstoffkonzentration in den Gasblasen auf ihrem Weg durch den Reaktorinhalt. Dies kann nur durch iterative Neuberechnung der Trajektorien im Modell realisiert werden.

Die Konvergenz der Lösung für die Gelöstsauerstoffkonzentration ist aber von diesen Neuberechnungen unabhängig. Deswegen kann die Häufigkeit dieser Berechnungen ganz vom jeweiligen Anspruch an die Genauigkeit der Gesamtlösung abhängig gemacht werden. Wenn die Sauerstoffverarmung der Gasblasen vernachlässigbar ist, kann auf die periodische Neuberechnung der Blasentrajektorien ganz verzichtet werden. Dies läßt sich feststellen, in dem die Trajektorien einmal für gänzlich sauerstofffreie Flüssigkeit berechnet werden, und man den Sauerstoffgehalt der Blasen beim Erreichen der freien Oberfläche betrachtet.

5.4.3.2 Trajektorienanzahl

Mit dem *einfachen* Algorithmus für Austauschprozesse im EULER-LAGRANGE-Modell (vgl. Abschnitt 5.4.2.1, auf Seite 110) ist es nötig, jeweils sehr viele Trajektorien zu berechnen, sofern stochastische Turbulenzeinflüsse auf die Blasenbahnen berücksichtigt werden. Es muß jedesmal das Abbild einer Mittelung über *viele* momentane Gasverteilungen im Reaktionsvolumen (über einen längeren Zeitraum) ermittelt werden. Nur so ähneln sich die räumlichen Verteilungen der Gasphase von einem iterativen Wechsel zwischen Stofftransport- und Trajektorienberechnung zum nächsten.

Der neue Algorithmus (vgl. Abschnitt 5.4.2.2, auf Seite 111) ist robust gegen Veränderungen der räumlichen Verteilung der Gasphase. Und auch ungleichmäßige Ergebnisfelder für den (berechneten) lokalen Gasvolumenanteil ε_g stören kaum die Stabilität und Genauigkeit der Berechnungen. Solche Felder ergeben sich, wenn nur jeweils eine begrenzte Anzahl von Blasentrajektorien (mit stochastischen Turbulenzeinflüssen) berechnet wird.

Unstetige Lösungen für den lokalen Gasvolumenanteil ε_g führen zwar zu erheblich variierenden Sauerstoffeinträgen in jeweils benachbarten Kontrollvolumina. Die zumeist intensive Turbulenz führt aber zu starken diffusiven Ausgleichsmassenströmen; in den berechneten (dreidimensionalen) Konzentrationsfeldern für Gelöstsauerstoff sind daher keine Einflüsse unstetiger Felder für den lokalen Gasvolumenanteil erkennbar. (Vergleiche hierzu die verschiedenen Abbildungen in Abschnitt 7.2.3, ab Seite 152.)

5.4.3.3 Druckeinflüsse

Rührkesselreaktoren für industrielle Produktionsprozesse können viele Meter hoch werden. (Besonders in der Biotechnologie findet man, wegen der relativ geringen Raum-Zeit-Ausbeuten, oft sehr große (Bio-) Reaktoren.) In solchen Reaktoren herrscht am unteren Ende ein erheblicher hydrostatischer Druck, der wesentlichen Einfluß auf den Stoffaustausch zwischen Gasblasen und Flüssigkeit hat. Die Löslichkeit einer Gaskomponente in einer Flüssigkeit ist nämlich immer proportional zum *absoluten Partialdruck* der Komponente in der Gasphase (HENRYSches Gesetz, vgl. Gleichung 2.3 - 10 [in Abschnitt 2.3] auf Seite 21).

Weiterhin ändert sich, durch die Kompressibilität des Gases in den Gasblasen, auch deren *Größe* auf ihrem Weg durch den Reaktor. Dies wird im Modell ebenfalls quantitativ berücksichtigt. Die Kompressibilität der Gasblasen wird dabei nach dem Gesetz von BOYLE-MARIOTTE beschrieben:

$$p \cdot V|_T = \text{const.} \quad (5.4 - 6)$$

Temperatureinflüsse und das Gesetz von GAY-LUSSAC²⁸ bleiben im Modell unberücksichtigt. Die Berechnung von Temperaturen würde auch die Berechnung spezifischer *Enthalpien* (sowie zusätzliche Stoffparameter) erfordern; der Aufwand stünde in keinem Verhältnis zum Genauigkeitsgewinn.

Ebenso wird beachtet, daß durch die Grenzflächenspannung σ zwischen Gas und Flüssigkeit, in Verbindung mit der Grenzflächenkrümmung an einer Gasblase, der Druck in einer Gasblase größer ist als derjenige in der umgebenden Flüssigkeit. Diese Druckdifferenz ist abhängig vom Blasendurchmesser:

$$\Delta p = \frac{4 \cdot \sigma}{d_{\text{Bl.}}} \quad (5.4 - 7)$$

5.4.4 Rührerrotation

Bei der Berechnung der Flüssigkeitsströmung rotiert der Rührer in der Simulation wie in der Realität und verändert somit ständig seine Stellung zu den Strömungsbrechern. Alle weiteren Modellschritte sind aber von dieser zeitlichen Variation entkoppelt (vgl. die Abschnitte 5.5.3 [S. 117] und 5.2.4 [S. 96]). Bei der Berechnung der Gasblasentrajektorien wird diese Vereinfachung mit besonderen Techniken wettgemacht, die in Abschnitt 5.3.2 (Seite 100) und Abschnitt E.4.1 (Seite 211) beschrieben sind.

²⁸ $V \cdot T|_p = \text{const.}$ – Dieses und das vorgenannte Gesetz ergeben zusammen die Zustandsgleichung für ideale Gase: $p \cdot V = m \cdot \mathcal{R} \cdot T$.

5.4.4.1 Rotationsmittelung

Auch bei der Simulation des Stofftransportes für den gelösten Sauerstoff müssen geeignete Maßnahmen getroffen werden, um die Rührerrotation voll in das Modell zu integrieren. Dies bedeutet konkret, daß die Stofftransportberechnung nicht bei *einer* Winkelstellung des Rührers zu den Strömungsbrechern stattfinden darf; statt dessen muß sie kontinuierlich über viele verschiedene Rührerstellungen gemittelt werden.

Realisierung Um dies zu realisieren, wurde wiederum eine spezielle Funktion programmiert. Während der Simulation des Stofftransportes in der Flüssigkeit berechnet sie zunächst den konvektiven und diffusiven Stofftransport durch die Grenze zwischen rotierendem und still stehendem Teilbereich, wie sie früher definiert wurde (siehe die oben zitierten Abschnitte). Das Ergebnis entspricht genau den Stoffflüssen, die von FLUENT standardmäßig an dieser Stelle verwendet werden. Somit kann also der Stofftransport durch die Bereichsgrenze im numerischen Modell genau annulliert werden, indem Quell- und Senkenterme in allen Zellen entlang der Grenze zwischen den Teilbereichen definiert werden.

In einem zweiten Schritt wird dann für *alle* möglichen Stellungen, die der innere Teilbereich (mit dem Rührer) relativ zum äußeren Teilbereich einnehmen kann, der konvektive und diffusive Stofftransport neu berechnet. Bedingung für die „möglichen“ Winkelstellungen ist hierbei, daß die radialen Gitterlinien ununterbrochen durchgehen (vgl. Abbildung E.3 auf Seite 210). So ergeben sich jeweils in jeder Zelle (entlang der Grenzfläche zwischen den Teilbereichen) neue Quell- und Senkenterme. Diese werden, unter Beachtung der Rotation des inneren Teilbereiches, jeweils lokal über alle „möglichen“ Rührerstellungen gleichmäßig gemittelt.

Somit entspricht die neue Stofftransportberechnung einer Mittelung über alle möglichen Rührerstellungen. Da die Zeitkonstante der Rührerrotation viel kleiner ist als diejenige der stofflichen Vermischung, ist dies eine brauchbare Näherung zur Abbildung der (eigentlich vollständig instationären) Vorgänge in das numerische Modell.

Genauigkeit Aus der beschriebenen Methode ergibt sich aber eine Schwierigkeit: In der numerischen Lösung der NAVIER-STOKES-Gleichung für den Transport gelösten Sauerstoffes wird (u.a.) der konvektive Stofftransport beschrieben. Wenn in der Simulation das innere Teilgebiet verdreht wird, kommen regelmäßig auch Zellen (an der Grenzfläche) nebeneinander zu liegen, die unterschiedlichen Strömungsgebieten entstammen, so daß die Flüssigkeitsgeschwindigkeiten an der Grenzfläche zwischen den Teilbereichen (innen und außen) keine ausgeglichene Bilanz mehr ergeben.

Für die Berechnung des konvektiven Stofftransportes in jeder einzelnen Zelle ist die dort herrschende Geschwindigkeit relevant; es gehen aber Konzentrationswerte aus den allseitigen Nachbarzellen mit ein. Dies führt zu einer Verletzung der Stoffbilanz für den gelösten Sauerstoff. Daher muß durch zusätzliche Quell- und Senkenterme in den einzelnen Volumenelementen entlang der Grenzfläche zwischen den Teilbereichen der Massenerhalt für den gelösten Sauerstoff wieder hergestellt werden.

Die beschriebene Berechnung kann nicht exakt sein. Sie ist aber die bestmögliche Näherung, die ohne einen besonderen (um Zehnerpotenzen höheren) Aufwand an Rechenzeit bewerkstelligt werden kann. Die Grenze zwischen rotierendem und still stehendem Teilbereich liegt nahe am Rührer. Hier ist die Flüssigkeitsströmung also hochgradig turbulent. Deswegen spielt der konvektive Stofftransport eine relativ geringe Rolle; er wird an vielen Stellen ganz vom turbulenzbedingten diffusiven („dispersiven“) Stofftransport überwogen.

5.4.4.2 Relativität

In Abschnitt 5.3.2.2 (Seite 101) wurde ausgeführt, daß die Blasentrajektorien in Rührernähe *relativ* zum Rührer berechnet werden müssen, um in physikalisch sinnvoller Weise den Rührer zu passieren. Ähnliches ist wiederum auf die Berechnung des Stofftransportes zu übertragen.

Bilanzfehler Wenn der Stofftransport ohne weitere Eingriffe gerechnet wird, benutzt FLUENT²⁹ überall *absolute* Geschwindigkeiten, die also auf das still stehende Bezugssystem des äußeren Teilbereiches bezogen sind. Das führt dazu, daß im Modell die Flüssigkeitsströmung *durch* das Rührerblatt geht (vgl. Abbildung 5.10, auf Seite 101). Dies hat aber einen störenden Einfluß auf die Gelöstsauerstoffbilanz. Dort, wo die Flüssigkeitsströmung in das Rührerblatt „eindringt“, enthält sie eine bestimmte Sauerstoffkonzentration; mit dieser Strömung verläßt also ein bestimmter Massenstrom an gelöstem Sauerstoff das Berechnungsgebiet [252].

Auf der gegenüberliegenden Seite des Rührerblattes tritt ein gleich großer Flüssigkeitsstrom aus dem Rührerblatt heraus und wieder in das Berechnungsgebiet ein. Für Massenanteile chemischer Spezies an Wänden gilt in der Simulation grundsätzlich eine VON NEUMANNsche Randbedingung. Das bedeutet, der (räumliche) Gradient des Massenanteiles (normal zur Wand) geht an der Wand gegen Null. Das hat zur Folge, daß der gedankliche Flüssigkeitsstrom, der „aus“ dem Rührerblatt kommt und in das Berechnungsgebiet eintritt, genau diejenige Sauerstoffkonzentration enthält, die (momentan) dort im wandnächsten Volumenelement herrscht.

Abhilfe Eine realistische Simulation der (konvektiven) Stofftransportflüsse am Rührerblatt ist nur zu erreichen, wenn wiederum mit *relativen* Geschwindigkeiten in Rührernähe gearbeitet wird. Nur dann wird z.B. der Weg der erwähnten „Schwade“ am Rührerblatt korrekt vorausgesagt, so daß sie im Modell auch korrekt die jeweiligen nieder- und höberturbulenten Bereiche durchläuft.

Zur Stofftransportberechnung wird also, durch einen weiteren benutzerprogrammierten Eingriff, das Strömungsfeld in Rührernähe mit der Rotationsgeschwindigkeit des Rührers transformiert. Es ergibt sich das in Abbildung 5.10 (Seite 101) rechts dargestellte Strömungsbild. Bei der Stofftransportsimulation mit diesem Strömungsfeld ist auch nachweislich der Massenerhalt für den gelösten Sauerstoff gegeben.

5.4.5 Freie Oberfläche

In realen Reaktoren existiert ein weiterer Sauerstoffzustrom in die Flüssigkeit, der in der bisherigen Beschreibung vernachlässigt wurde. Sauerstoff tritt nämlich auch aus dem Gasraum im Reaktorkopf durch die freie Flüssigkeitsoberfläche direkt in die Flüssigkeit über.³⁰ Diese Oberflächenbegasung kann vor allem in *kleinen* Reaktoren einen erheblichen Anteil am gesamten Sauerstoffeintrag in die Flüssigkeit ausmachen [134, 205]. Ihr Beitrag schrumpft bei der Maßstabsvergrößerung schnell auf einen gänzlich unbedeutenden Anteil; deswegen ist es wichtig zu wissen, welchen Beitrag sie im Labor- oder Pilotreaktor spielt, von dem die Maßstabsvergrößerung ausgeht.

Der Stoffdurchgang an der freien Flüssigkeitsoberfläche kann ganz analog zum Stoffdurchgang an der Blasengrenzfläche beschrieben werden. Für die Größe der Grenzfläche wird dabei die horizontale freie Querschnittsfläche im Reaktorinneren verwendet. Die Tatsache, daß die Phasengrenze

²⁹Mit „FLUENT“ sind hier grundsätzlich die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Versionen 4.4 und 4.5 gemeint.

³⁰Dieses Phänomen ist nicht mit dem *Gaseintrag* in die Flüssigkeit in Form von (turbulenz erzeugten) *Gasblasen* zu verwechseln. Dieser wurde in Abschnitt 5.3.4.1 (Seite 105) diskutiert. Dort wird auch erklärt, daß der Blaseneintrag an der Flüssigkeitsoberfläche im Modell unberücksichtigt bleiben muß.

im gerührten Reaktor nicht eben und deswegen größer ist, muß durch einen Korrekturfaktor eingeführt werden.

Andere Gleichung Es wurde experimentell gezeigt, daß an einer freien Flüssigkeitsoberfläche der Stoffaustausch vorrangig von den *großen, energiereichen* Turbulenzwirbeln verursacht wird [97, 100, 157]. Somit sollte an dieser Stelle nicht Gleichung 4.1 - 30, sondern Gleichung 4.1 - 29 angewendet werden (beide in Abschnitt 4.1.3.3, auf Seite 62):

$$\beta_l = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \left(\frac{D}{\nu}\right)^{b_D} \cdot \sqrt{\frac{\nu \cdot \epsilon}{2 \cdot k}} \quad (5.4 - 8)$$

Dementsprechend wurden erneut Zusätze im Simulationsprogramm eingerichtet.

Ähnlich wie in Abschnitt 5.4.1.2 (Seite 108) ist auch hier eine Proportionalitätskonstante zu bestimmen. Da die mathematische Beschreibung innerhalb dieses Modelles natürlich nur eine Näherung sein kann, wird ihr Wert ebenfalls vom theoretischen Wert in Gleichung 5.4 - 8 abweichen.³¹ In sie geht auch der Korrekturfaktor für die nichtebene Form der Phasengrenze ein.

5.4.6 Sauerstoffverbrauch

Wie oben dargestellt, sollen im fertigen Modell Sauerstoffeintrag (aus den Blasen in die Flüssigkeit), -transport *und* -verbrauch modelliert und gegeneinander bilanziert werden, um ein stationäres Konzentrationsprofil im Reaktor vorauszusagen. Als mathematische Beschreibung für die (spezifische) *Verbrauchsrate* des gelösten Sauerstoffs in der Flüssigkeit wurde das MONODmodell verwendet. Hierin sind freie Parameter die Sauerstoffkonzentration halbmaximaler Verbrauchsrate und die volumenbezogene maximale Verbrauchsrate.

5.4.7 Zusammenfassung

Auf der Grundlage von Flüssigkeitsströmung und disperse Gasphasenströmung wird der lokale Sauerstoffübergang aus den Gasblasen in die Flüssigkeit berechnet. Diese Berechnung geschieht während der Berechnung der Gasblasentrajektorien, wobei Quellterme für gelösten Sauerstoff in jedem Bilanzkontrollvolumen aufsummiert werden. Diese werden dann bei der nachfolgenden Bilanzierung von Sauerstoffeintrag, -transport und -verbrauch in einer normalen NAVIER-STOKES-Gleichung als Quellterme berücksichtigt.

Für die Gleichgewichtseinstellung ist ein sehr häufiges Neuberechnen der Sauerstoffquellterme erforderlich, was auch eine sehr häufige Neuberechnung vieler (turbulenzbeeinflusster) Gasblasentrajektorien bedingt. Der damit verbundene numerische Aufwand ist sehr groß. Deswegen wurde eine modifizierte Vorgehensweise entworfen und implementiert, die eine näherungsweise Gleichgewichtseinstellung *ohne* eine Neuberechnung der Gasblasentrajektorien ermöglicht (s. Abschnitt 5.4.2.2, auf Seite 110).

Weiterhin wurden spezielle Modellelemente entwickelt, um der realen Rührerrotation im Modell möglichst wirklichkeitsgetreu Rechnung zu tragen. Eine Mittelung des Stofftransportes über alle Rührerstellungen und eine realistische Behandlung des konvektiven Stofftransportes in Rührernähe wurden durch benutzerprogrammierte Programmroutinen im verwendeten Simulationsprogramm implementiert.

³¹An dieser Stelle geht z.B. eine eventuelle Unsicherheit über den korrekten Exponenten b_{Sc} an der SCHMIDTzahl ein (s. Gleichung 5.4 - 8). In der praktischen Anwendung wird die Proportionalitätskonstante daher ein Wert sein, der vom verwendeten Stoffsystem abhängt. (Letzteres hängt, in biotechnologischen Prozessen, neben der Medienrezeptur natürlich stark vom verwendeten [Mikro-] Organismus ab.)

Schließlich wurde das Modell noch dahingehend erweitert, daß auch der Stoffaustausch durch die freie Flüssigkeitsoberfläche im Rührreaktor quantitativ und ortsauflösend berücksichtigt wird.

5.5 Zusammenfassung

Das gesamte in dieser Arbeit entwickelte Modell für den Stoffaustausch und -transport in begasten Rührkesselreaktoren besteht aus verschiedenen Schritten, die teilweise nacheinander und teilweise parallel ausgeführt werden.

5.5.1 Flüssigkeitsströmung

Der erste Hauptschritt ist die Berechnung der Flüssigkeitsströmung, die auch den Stofftransport an gelöstem Sauerstoff vermittelt. Diese ist in Abschnitt 5.2 (Seite 93) beschrieben.

Voruntersuchungen zeigten, daß vollständig korrekte Informationen über das Strömungsfeld und seine räumlichen Turbulenzcharakteristika im verwendeten Versuchsreaktor (mit einem sehr geringen Abstand zwischen Rührerspitze und Strömungsbrecher) nur aus einer voll instationären Strömungssimulation gewonnen werden konnten.

Um den weiteren Modellstufen ein möglichst repräsentatives Abbild der periodisch schwankenden Flüssigkeitsströmung zu Grund zu legen, wurde das (instationäre) Strömungsfeld der Flüssigkeit in besonderer Weise *ortsauflöst* über eine Rotationsperiode *gemittelt* (vgl. Abschnitt 5.2.4, auf Seite 96).

5.5.2 Gasphase

Im nächsten Schritt wird die Strömungsbewegung der Gasphase in Form von Partikel- (Blasen-) -trajektorien eingeführt. Diese Vorhersage der Zweiphasenströmung in einem begasten Rührkessels auf der Grundlage einer direkten Rührersimulation (kein Rührerersatzmodell) ist eine Neuentwicklung, die einige Veränderungen am verwendeten Simulationsprogramm erforderte. Die Trajektorien mußten in Rührernähe *relativ* zu diesem berechnet werden, um am Ende realistische Modellvoraussagen zu ermöglichen.

In der Strömungsberechnung für die Gasblasen wurde ein spezielles Modell für den turbulenzabhängigen Blasenzerfall implementiert. Dies erlaubt eine plausible Voraussage und Berücksichtigung der sich ausbildenden *Blasengrößenverteilung* in der Simulation.

5.5.3 Entkopplung

Im entwickelten Modell mußte, im zeitlich begrenzten Rahmen der vorliegenden Arbeit, der Einfluß der Gasphase auf die Flüssigkeitsströmung vernachlässigt werden. Dadurch kommt es zu einer Entkopplung: Nachdem die Flüssigkeitsströmung einmal vollständig berechnet ist, wird das berechnete Strömungsfeld „eingefroren“, und es werden *darin* Gasblasenströmung, Stoffaustausch und Stofftransport berechnet.

Nur auf diesem Wege läßt sich die Berechnung der Teilphänomene, die sehr unterschiedliche charakteristische Zeitkonstanten haben, trennen. (Die Zeitkonstante der Rührerdrehung [Zeitdauer zwischen zwei Rührerblattpassagen am Strömungsbrecher] ist *viel* kleiner als die Zeitkonstante, mit der sich asymptotisch eine konstante Gasverteilung im Reaktor einstellt.) Diese Entkopplung ist wiederum eine gute Voraussetzung für eine effiziente numerische Behandlung des Gesamtproblems.

5.5.4 Stoffaustausch

Während der Berechnung der Blasentrajektorien wird der *Stoffaustausch* mit der Flüssigkeit berechnet, so daß die Sauerstoffverarmung in der Gasblase genau modelliert werden kann. Daraus ergeben sich lokale Quellterme für gelösten Sauerstoff an jedem Punkt im Reaktor, die dann bei der nachfolgenden *Stofftransport*berechnung eingehen. Zusammen mit einem Modellansatz für den *Verbrauch* an gelöstem Sauerstoff ergeben sich dann Voraussagen für (zeitkonstante) räumliche *Konzentrationsprofile* des Gelöstsauerstoffes.

Die hierbei vorsichgehende Gleichgewichtseinstellung kann aber numerisch nur mit akzeptablem Aufwand erreicht werden, indem die Aktualisierung der erwähnten Quellterme von der wiederholten Trajektorienberechnung entkoppelt wird. (Dies ist in Abschnitt 5.4.2.2 auf Seite 110 genau beschrieben).

Weiterhin wurden spezielle Modifikationen im verwendeten Simulationsprogramm implementiert, um der Rührerrotation Rechnung zu tragen, nämlich eine Mittelung des Stofftransportes über alle Rührerstellungen sowie in Rührernähe eine Stofftransportberechnung *relativ* zum rotierenden Bezugssystem des Rührers.

Numerische Details

Zur effizienten Ausführung der numerischen Stoffaustausch- und -transportsimulation wurden zusätzliche Modifikationen des verwendeten Simulationsprogrammes eingebracht. Diese sind im Anhang E.5 (Seite 212) beschrieben.

Kapitel 6

Experimente

Das im vorigen Kapitel entwickelte Modell wurde im Rahmen dieser Arbeit mit experimentellen Meßdaten validiert. Die dazu ausgeführten Experimente werden in diesem Kapitel beschrieben. Anschließend (in Kapitel 7, auf Seite 143) werden dann die zugehörigen Simulationsergebnisse den experimentellen Daten gegenübergestellt und so die Leistungsfähigkeit des aufgestellten Modells beurteilt.

Das aufgestellte Modell sagt den räumlich inhomogen verteilten Sauerstoffeintrag in die Flüssigkeit in einem begasten Rührkessel aus den Gasblasen und durch die freie Flüssigkeitsoberfläche voraus. Es werden aber auch, darauf aufbauend, die sich einstellenden (stationären) *Konzentrationsprofile* in verschiedenen Betriebszuständen eines aeroben Bioprozesses errechnet, in dem Sauerstoffeintrag und -verbrauch (durch die suspendierten Mikroorganismen) im Gleichgewicht stehen.

Die zuletzt genannten Konzentrationsprofile für Gelöstsauerstoff sind die relevante Größe, die z.B. Aufschluß darüber gibt, ob schädliche Inhomogenitäten in der Sauerstoffversorgung suspendierter Organismen im Bioprozeß existieren. Diese Konzentrationswerte wurden deswegen in einem sauerstofflimitierten Betriebszustand mit spezieller Meßtechnik an mehreren ausgewählten Punkten aufgenommen, um sie dann mit den Ergebnissen numerischer Simulationen zu vergleichen.

Im folgenden werden zunächst die verwendeten Meßeinrichtungen sowie deren Kalibrierung und dann die ausgeführte und ausgewertete Fermentation mit den verschiedenen eingestellten Betriebszuständen erläutert.

6.1 Prozeßleitrechner

Zur Durchführung aller Meß- und Regelaufgaben während der Fermentation wurde ein Prozeßleitsystem „UBICON“ [33] verwendet. Es handelt sich um ein modular aufgebautes Computersystem auf der Basis eines Prozessors aus der 68000er Familie. Es enthält Arbeits- und Massenspeicher (Festplatte und Floppy-Diskette [zum Datenaustausch]), graphische Bildschirmanzeige, Maus- und Tastaturbedienung.

Weiterhin ist eine Anbindung an das betriebsinterne Datennetzwerk gegeben; diese erlaubt Datenaustausch und vor allem eine *kontinuierliche Fernüberwachung* aller direkt vom Rechnersystem erfaßten Prozeßparameter, und zwar an jedem beliebigen Rechner, der Anschluß an das Firmen-Intranet (oder an das externe Internet) hat. Der Rechner ist mit diversen digitalen und analogen Ein- und Ausgängen ausgestattet. (Die analogen Anschlüsse enthalten entsprechende Wandler zwischen der analogen Meßtechnik und dem digitalen Rechner-Innenleben.)

Unter dem Betriebssystem „RT-OS“ (*“real time operating system”*) wird die eigentliche Prozeßleitsystem-Software „UBICON“ ausgeführt. Das Gesamtsystem aus Hardware und Soft-

ware ist eine gemeinsame Entwicklung der GBF (Gesellschaft für Biotechnologische Forschung mbH) Braunschweig und der Firma „esd“ in Hannover; letztere besorgt nunmehr die Vermarktung, Benutzerbetreuung und Weiterentwicklung.

Am Rechner können Meßeinrichtungen sowie Aktoren aller Art angeschlossen werden. Erstere liefern analoge Signale (Strom oder Spannung, kontinuierlich) oder auch digitale Meßdaten (diverse Übertragungsprotokolle, in beliebigen Zeitschritten) an das System. Letztere (die Aktoren) sind Motoren für Rührer und Pumpen sowie Gasflußregler, die vom Rechnersystem angesteuert und geregelt werden können.

6.2 Massenstromregler

Für reproduzierbare Messungen ist es nötig, Gasströme, die durch den (ansonsten absatzweise gefahrenen) Bioreaktor geleitet wurden, genau zu regeln. Dafür standen zwei Massenstromregler zur Verfügung, mit denen Gasmassenströme von Luft und reinem Stickstoff gemessen und geregelt werden konnten.

Die verwendete Meßmethode ist die elektrische Aufheizung des Gasstromes um eine definierte Temperaturdifferenz. Der hierfür benötigte Wärmestrom wird durch eine elektrische Heizung generiert; diese wird automatisch so geregelt, daß sich das Gas genau um die definierte Temperaturdifferenz erwärmt. (Dafür liegen Temperaturfühler vor und hinter der Heizung im Gasstrom.) Die benötigte elektrische Leistung ist direkt proportional zum Gasmassenstrom; der Proportionalitätsfaktor ist die spezifische Wärmekapazität des Gases.

Es wurden zwei kommerzielle Geräte der Firma MKS, München verwendet. Mit jedem derartigen Massenstrommeßgerät war ein elektrisch verstellbares Ventil mit elektronischem Regler verbunden. Die komplette Einheit erlaubte jeweils die automatische Regelung eines Gasmassenstromes auf einen vom Prozeßleitsystem vorgegebenen Wert; der tatsächlich gemessene Istwert wurde dabei separat angezeigt und an das Prozeßleitsystem übermittelt.

Der Flußregler für Stickstoff war werksneu und frisch für Luft oder Stickstoff kalibriert; seine Ausgabewerte konnten als verläßlich gelten. Er war über ein digitales Protokoll direkt mit dem Prozeßleitrechner verbunden. Der Flußregler für Luft war älter und verfügte über analoge Ein- und Ausgänge. Er erforderte eine Neukalibrierung. Diese Kalibrierung wurde überprüft, wie in Abschnitt 6.7.1 (Seite 130) angegeben.

6.3 Gasanalysator

Zur Messung des gesamten Sauerstoffübergangs aus der Gasphase in die Flüssigkeit wurde die Sauerstoffkonzentration im Abgas des Reaktors gemessen. Mit dem Gasmassenstrom und der Sauerstoffkonzentration in der Gaszufuhr kann so der Sauerstoffeintrag in die Flüssigkeit kontinuierlich bestimmt werden. (Dabei ist eine Verzögerung von einigen Minuten zu berücksichtigen; diese ergibt sich weitgehend aus dem Vermischungsverhalten des Gases im reichlich 10 Liter fassenden Reaktorkopf.)

6.3.1 Meßprinzip

Das Meßprinzip beruht auf dem *Paramagnetismus* von elementarem Sauerstoff:

Jedes Sauerstoffmolekül enthält zwei einfach besetzte Orbitale in der 2p-Unterschale der gemeinsamen Elektronenhülle beider Atomkerne. (Daher rührt auch der starke Radikalcharakter

molekularen Sauerstoffs.) Die beiden ungepaarten Elektronen haben (im energetischen Grundzustand) denselben „*spin*“ (eine Quantenzahl, die anschaulich dem Eigendrehimpuls des Elektrons entspricht); dadurch ergibt sich für das Molekül ein Gesamt-„*spin*“ ungleich null. Dieser sogenannte „Triplett-Zustand“ hat schließlich einen positiven elektronischen Eigendrehimpuls des gesamten Moleküls zur Folge.

Ein (positiv) von null verschiedener elektronischer Eigendrehimpuls gibt einer Substanz auch eine positive magnetische *Suszeptibilität* (transiente Magnetisierbarkeit). Das bedeutet, daß eine solche Substanz ein durch sie hindurchgehendes Magnetfeld in sich zusammenzieht. In der Veranschaulichung eines Magnetfeldes mit Feldlinien drängen sich die Feldlinien lokal zusammen, um möglichst durch die paramagnetische Substanz zu gehen. Folge ist, daß die Substanz, obwohl sie *nicht ferromagnetisch* ist¹, selbst in das Magnetfeld hineingezogen wird.²

6.3.2 Meßmethode

Nur wenige molekulare (ungeladene) chemische Verbindungen besitzen einen ausgeprägten Paramagnetismus. In Abgasen aus Bioreaktoren kommt von diesen fast nur Sauerstoff (O₂) vor. (Lediglich Stickstoffmonoxid [NO] besitzt ebenfalls einen [zudem stärker] ausgeprägten Paramagnetismus.) Deswegen ist die Eigenschaft sehr geeignet, in einem spezifischen und empfindlichen Meßsystem für Sauerstoff ausgenutzt zu werden.

Zur Messung des Sauerstoffanteils in einem Gas (-strom) wird dieses Gas durch ein *inhomogenes* Magnetfeld geleitet, so daß es in dieses hineingezogen werden kann. Dann muß die auf den Gasstrom wirkende Kraft quantitativ detektiert werden. Dies geschieht im Sauerstoffanalysator „Oxygor 610“ der Firma Maihak: Ein inhomogenes Magnetfeld beschleunigt einen (paramagnetischen) Gasstrom quer zur Strömungsrichtung. Dadurch entsteht an der Innenwand des Strömungskanals ein Druckunterschied zwischen gegenüberliegenden Seiten.

6.3.3 Meßverfahren

Abbildung 6.1 zeigt die Einzelheiten des Meßverfahrens: An den beiden Stellen, an denen die höchsten und niedrigsten Drücke im Strömungskanal auftreten, werden kleine Ströme eines zusätzlichen „Meßgases“ zugeführt; sie werden beide aus derselben Zufuhrleitung gespeist, so daß sie stets denselben Vordruck haben.

Durch die Druckänderungen an den Einlaßstellen in den Kanal verändern sich die Massenflüsse dieser beiden Meßgasströme. Diese werden nun im Meßgerät gemessen und miteinander verglichen. Ihre Differenz ist proportional zum Sauerstoffanteil im Meßgasstrom.

Die Messung der Meßgasströme kann z.B. mit Massenstrommessern geschehen, wie sie in Abschnitt 6.2 beschrieben sind. Als Meßgas kann Luft verwendet werden; höhere Anforderungen an die Genauigkeit und Linearität des Verfahrens lassen sich mit sauerstofffreiem Meßgas, also z.B. Stickstoff erreichen.

6.4 Sauerstoffelektrode

Hauptanteil der ausgeführten Messungen war die Bestimmung von Gelöstsauerstoffkonzentrationen in der flüssigen Bakterienkultur im Reaktor. Dazu stand u.a. eine Sauerstoffelektrode nach CLARK

¹Ferromagnetische Substanzen werden von den Polen eines Magneten angezogen (oder, wenn sie permanent magnetisiert [d.h. „magnetisch“] sind, auch abgestoßen).

²Die paramagnetische Substanz wird aber nicht entlang den Feldlinien zu einem Pol des erregenden Magneten gezogen, sondern nur *quer* zu den Feldlinien in das Feld hinein.

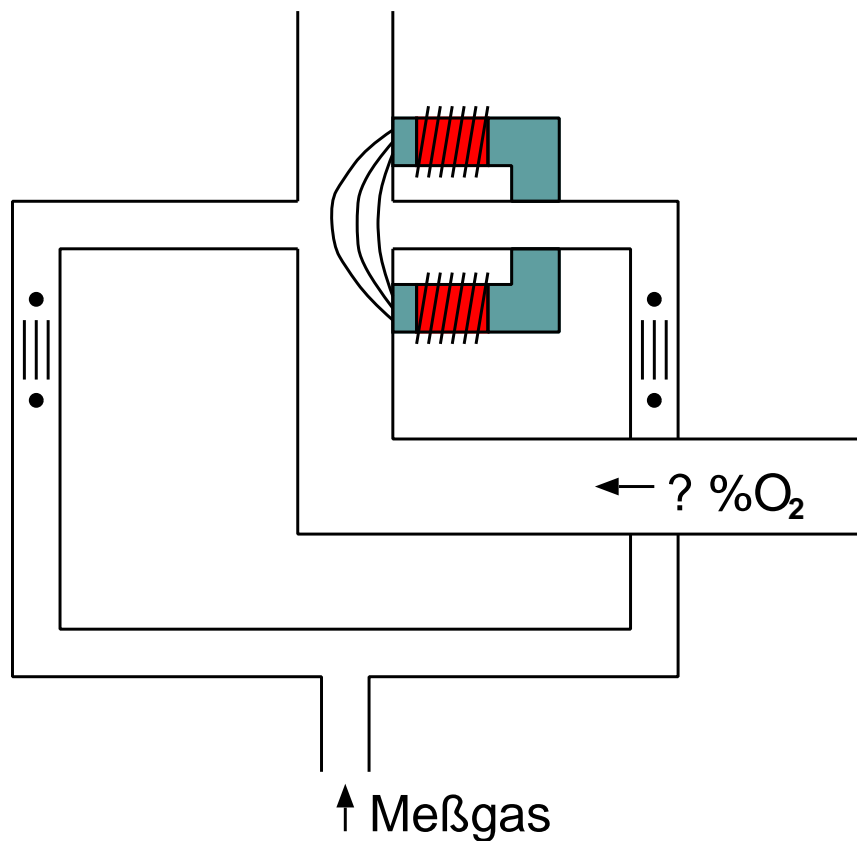


Abbildung 6.1: Schemaskizze des Gasphasen-Sauerstoff-Analysators („Oxygor“). Der Gasstrom unbekannten Sauerstoffgehaltes strömt durch einen Kanal, an den einseitig ein (inhomogenes) Magnetfeld angelegt ist. Sauerstoff wird wegen seines Paramagnetismus in das Magnetfeld gezogen, so daß eine Druckdifferenz zwischen den beiden Einmündungsstellen für ein zusätzliches Meßgas entsteht. Dadurch unterscheiden sich die beiden Meßgasteilströme, die in den jeweils angedeuteten Anordnungen aus zwei Temperaturfühlern und einem Heizblock gemessen werden. Die Druck- und damit auch die Strömungsdifferenz der Meßgasteilströme ist proportional zum Sauerstoffgehalt des Hauptgasstromes.

zur Verfügung.³

6.4.1 Meßprinzip

Das Meßprinzip basiert auf elektrochemischen Zusammenhängen: In einen elektrolytgefüllten Meßraum ragen eine saubere Platinelektrode sowie eine geeignete Bezugselektrode. Letztere erlaubt einen Elektronenaustausch mit der Flüssigkeit bei einem konstanten elektrochemischen Redoxpotential.

6.4.1.1 Bezugselektrode

In der verwendeten Elektrode befindet sich als Bezugselektrode eine Ausführung der häufig eingesetzten Silber/Silberchlorid-Elektrode: Der Elektrolyt enthält Silber- und Chloridionen; die eigentliche Elektrode besteht aus Silber mit Ablagerungen von unlöslichem Silberchlorid. Folgende Redoxreaktion findet hier statt:



Wegen der geringen Löslichkeit von Silberchlorid stehen die Ionen im Gleichgewicht mit dem festen Silberchlorid-Niederschlag. Die vorgelegte hohe Konzentration von Chloridionen ändert sich relativ wenig⁴; daher sind Konzentration und chemische Aktivität der Silberionen konstant, so daß auch die gesamte Bezugselektrode ein verläßlich konstantes Potential hat.

(Dessen Wert hängt von der Konzentration gelöster Silberionen ab, die wiederum von der Konzentration freier Chloridionen bestimmt wird (Löslichkeitsprodukt). Mit einer (silbergesättigten) Elektrolytlösung von $0,1 \frac{\text{kmol}}{\text{m}^3}$ KCl ergibt sich ein Redoxpotential von ca. 290 mV gegenüber dem Bezugspotential der Normalwasserstoffelektrode [213, Seite 337])

6.4.1.2 Arbeitselektrode

An der Platinelektrode können beliebige (homogene) Redoxreaktionen ablaufen, bei denen Elektronen ausgetauscht werden müssen; letztere können durch das Metall aufgenommen oder abgegeben werden. Erwünscht ist hier die Reduktion von molekularem Sauerstoff zu Hydroxylionen:



Für Gaspartialdrücke von einer physikalischen Atmosphäre und Ionenkonzentrationen (bzw. eigentlich -aktivitäten) von $1 \frac{\text{kmol}}{\text{m}^3}$ hat diese Reaktion ein Redoxpotential von +400 mV (Elektroden-Standard-Potential [11]).

In Kombination mit der beschriebenen Bezugselektrode (s. den vorigen Abschnitt) entsteht eine Elektrolysezelle, in der eine von aussen angelegte elektrische Spannung folgende chemische Gesamtreaktion von links nach rechts treibt:



Die vorgelegte Kaliumchloridlösung wird bei der Reaktion in Kalilauge umgewandelt. Damit die anwachsende Konzentration der Hydroxylionen die Elektrodenpotentiale nicht verändert, kann dem Elektrolyten

³In [104] findet sich ein umfassender Artikel über alle Details zu CLARK-Elektroden [172].

⁴Der hohe Überschuß an Chloridionen erfordert lösliche Gegenionen; hierzu wird standardmäßig eine (z.B. 0,1-molare) Kaliumchloridlösung verwendet.

ein geeignetes Puffersystem zugesetzt werden. Bei variierenden Sauerstoffpartialdrücken und neutralem pH (Hydroxylionenkonzentration $[\text{OH}^-] = 10^{-7} \frac{\text{kmol}}{\text{m}^3}$) weicht das Elektrodenpotential gemäß der NERNSTschen Gleichung vom Elektroden-Standard-Potential ab:

$$E = E_0 + \frac{R \cdot T}{n \cdot F} \cdot \ln \frac{c_{\text{Ox}}}{c_{\text{Red}}} \quad (6.4 - 5)$$

Hierin sind:

E	[in V]	das Elektrodenpotential;
E_0	[in V]	das <i>Standard</i> elektrodenpotential, gültig bei $c_{\text{Ox}} = c_{\text{Red}}$;
R	[in $\frac{\text{J}}{\text{kmol} \cdot \text{K}}$]	die allgemeine Gaskonstante: $R = 8314,41 \frac{\text{J}}{\text{kmol} \cdot \text{K}}$;
T	[in K]	die absolute Temperatur;
n	[in 1]	die Anzahl der pro Molekül des Redoxpaares überführten Elektronen;
F	[in $\frac{\text{C}}{\text{kmol}}$]	die FARADAYSche Konstante: $F = 96,487 \cdot 10^6 \frac{\text{C}}{\text{kmol}}$;
c_{Ox}	[in $\frac{\text{kmol}}{\text{m}^3}$]	die Konzentration der oxidierten Form des Redoxpaares;
c_{Red}	[in $\frac{\text{kmol}}{\text{m}^3}$]	die Konzentration der reduzierten Form des Redoxpaares.

6.4.2 Meßmethode

Wird die angelegte Spannung an der beschriebenen Elektrolysezelle hinreichend hoch gewählt, so werden alle Sauerstoffmoleküle, die die Elektrode erreichen, sofort reduziert. Wird der Elektrolyt nicht gerührt, ist der fließende Strom proportional zum *diffusiven* Strom von Sauerstoffmolekülen zur Arbeitselektrode. Wenn außerdem eine definierte, konstante Diffusionsbarriere an der Arbeitselektrode realisiert wird, ist der fließende Strom proportional zum Sauerstoffpartialdruck außerhalb dieser Diffusionsbarriere.

6.4.2.1 Diffusion

Die Diffusionsbarriere ist in der Praxis zumeist eine Silikonmembran. Sie ist undurchlässig für Wasser und polare Substanzen, also insbesondere Ionen. Gänzlich unpolare Gasmoleküle wie Sauerstoff können aber leicht durch Silikon hindurchdiffundieren.

Dies gilt (in unterschiedlichem Ausmaß) auch für einige andere Verbindungen, die dann an der Arbeitselektrode reduziert werden können. Daher ist die CLARK-Elektrode nicht absolut spezifisch für Sauerstoff.

Die Elektrode verbraucht selbst Sauerstoff; wenn die Flüssigkeit an der Außenseite der Elektrode, in der die Sauerstoffkonzentration gemessen werden soll, ruht, verarmt sie durch diesen Verbrauch an Sauerstoff. Die Messung beeinflusst in diesem Fall das Meßgut und ergibt driftende (und zunehmend falsche) Ergebnisse [25].

6.4.2.2 Strömung

CLARK-Elektroden sind also nur dann sinnvoll einsetzbar, wenn die Flüssigkeit an der Elektrode ständig in definierter Strömung ist. Es bildet sich dann eine laminare Flüssigkeits-Grenzschicht an der Membran aus; sie trägt zusätzlich zur erwähnten Diffusionsbarriere bei. Deswegen muß die *Kalibrierung* unter denselben Strömungsbedingungen vorgenommen werden, die später im Meßbetrieb herrschen.

(Das heißt, mindestens zwei verschiedene, definierte Sauerstoffkonzentrationen werden eingestellt, und das Meßsignal wird registriert. Intakte Elektroden zeigen ein lineares Verhältnis zwischen Konzentration und Meßstrom, wobei der Strom ganz ohne Sauerstoff vernachlässigbar klein wird; bei der Kalibrierung muß aber auch der Nullpunkt des empfindlichen Meßverstärkers justiert werden.)

Die aufgestellte Forderung nach konstanter Strömung ist in realen Fermentationen nicht immer haltbar: Zum einen wird, um den Sauerstoffeintrag in die Flüssigkeit zu verändern, die Rührerdrehzahl variiert. Zum anderen kann, in bestimmten Fermentationen, auch die Viskosität der Fermentationsbrühe erheblich variieren. Beides verändert den außen an der Silikonmembran anliegenden laminaren Flüssigkeitsfilm und dessen Beitrag zur Diffusionsbarriere. Somit verändern beide Faktoren das Meßsignal einer CLARK-Elektrode.

6.4.3 Meßverfahren

In der technischen Fermentationspraxis werden CLARK-Elektroden bei einer konstanten sog. *Polarisationsspannung* betrieben (gewöhnlich zwischen 500 mV und 600 mV). Der fließende Strom ist dann proportional zur Sauerstoffkonzentration außerhalb der Diffusionsbarriere.

6.4.3.1 Amperometrie

Das beschriebene Verfahren heißt „Amperometrie“. Für die genannte Proportionalität gelten hier folgende Einschränkungen:

1. Gemäß der NERNSTschen Gleichung (Gl. 6.4 - 5) hängt jedes Elektrodenpotential von den Konzentrationen der beteiligten Reaktanden ab. Sinkt die Sauerstoffkonzentration stark ab, so steigt die notwendige Spannung für eine quantitative Umsetzung aller Sauerstoffmoleküle an der Arbeitselektrode. Diese Elektrolysespannung variiert mit dem Logarithmus der Konzentration; bei üblichen Polarisationsspannungen ist der Effekt erst unterhalb einer Sauerstoffkonzentration von 0,01% Luftsättigung zu erwarten.
2. Wie bereits erwähnt, können neben Sauerstoff auch andere, hinreichend unpolare, Verbindungen in den Elektrolytraum diffundieren und dort reduziert werden. In Fermentationen entstehen häufig viele verschiedene, teils nur schwach polare, organische Verbindungen, für die dies zutreffen kann (z.B. verschiedene Alkohole).

6.4.3.2 Polarographie

Die letztgenannte Einschränkung läßt sich ausräumen, indem die Spannung regelmäßig kontinuierlich variiert wird. Für jede elektrochemisch reagierende Spezies ist dann bei einer jeweils charakteristischen Spannung eine plötzliche Veränderung des fließenden Stromes zu beobachten. Bei einer kontinuierlichen Prozeßüberwachung kann auch in der zeitlichen Veränderung der „Spektren“ immer diejenige Stufe identifiziert werden, die von Sauerstoff verursacht wird.

Diese Analysenmethode heißt „Polarographie“ [8]. In englischsprachigen Veröffentlichungen wird häufig die Verwendung polarographischer Sauerstoffelektroden angegeben. Handelsüblich sind aber nur amperometrische Sonden, deren Betrieb und Signalverarbeitung erheblich einfacher sind. Es muß angenommen werden, daß die verschiedenen Begriffe unzureichend unterschieden werden.

6.5 Faseroptischer Sauerstoffsensor

Die meisten handelsüblichen CLARKElektroden sind relativ groß und starr in ihrer Bauform; es ist schwierig, etliche Sonden an unterschiedlichen Positionen in einem kleinen Pilotreaktor zu installieren, um *lokale* Sauerstoffkonzentrationen zu bestimmen.

Daraus ergibt sich, warum CLARK-Elektroden für die Experimente in der vorliegenden Arbeit wenig geeignet waren: Es sollten sehr geringe Sauerstoffkonzentrationen an verschiedenen Stellen

in einem kleinen Pilotreaktor gemessen werden. Darum wurde ein *faseroptischer Sauerstoffsensor* eingesetzt, der im folgenden beschrieben wird.

6.5.1 Meßprinzip

Die *Fluoreszenz* bestimmter Farbstoffe kann durch Sauerstoff *gelöscht* werden. Das bedeutet, daß ein (durch hinreichend kurzwellige elektromagnetische Strahlung) angeregtes Farbstoffmolekül seine überschüssige Energie auf ein Sauerstoffmolekül überträgt und somit *strahlungslos* in den energetischen Grundzustand zurückkehrt.

Die Fluoreszenzintensität sinkt mit zunehmendem Partialdruck (chemischer Aktivität) des Sauerstoffs. Der Zusammenhang wird von der STERN-VOLMER-Gleichung beschrieben:

$$\frac{I_0}{I} = 1 + K_{SV} \cdot p_{O_2} \quad (6.5 - 6)$$

Hierin sind:

- I_0 ... die (relative) Fluoreszenzintensität ohne Sauerstoff,
- I ... die (relative) Fluoreszenzintensität mit Sauerstoff,
- K_{SV} ... eine Stoffkonstante und
- p_{O_2} ... der Sauerstoffpartialdruck.

(Die Fluoreszenzintensitäten können z.B. als Spannungen am Signalausgang eines Sekundär-Elektronen-Vervielfachers [als quantitativer Lichtsensor] ausgedrückt werden. Die Einheit der STERN-VOLMER-Konstante K_{SV} ist der Kehrwert der Einheit des Partialdruckes. Letztere kann frei gewählt werden [Pa, oder z.B. % Luftsättigung], wobei der Zahlenwert der Konstanten K_{SV} sich entsprechend ändert).

Gleichung 6.5 - 6 ist die mathematische Beschreibung einer *Hyperbel*. Die größte Signaländerung je Einheit des Partialdruckes ergibt sich daher bei der geringsten Sauerstoffkonzentration. Die Empfindlichkeit der Meßmethode ist also bei sehr *kleinen* Partialdrücken am größten. Dies kommt der Meßaufgabe, sehr kleine Konzentrationen möglichst genau zu bestimmen, entgegen.

6.5.2 Meßmethode

Das beschriebene Prinzip wird von der Firma *Comte Analysesysteme*, Hannover, in einem mehrkanaligen Sauerstoffsensor („MOPS“) für spezielle Anwendungen vermarktet.

Als Farbstoff kommt Tris(4,7-diphenyl-1,10-phenanthrolin)-ruthenium(II)-chlorid zum Einsatz [64, 158]; es wird in einer Silikonmatrix eingebettet, indem es vor dem Aushärten den flüssigen Grundchemikalien beigemischt wird. In solch einer Umgebung zeigen die Farbstoffmoleküle eine besonders starke Fluoreszenzlöschung durch Sauerstoff (große STERN-VOLMER-Konstante K_{SV}).

Die farbstoffhaltige Silikonmatrix wird als Indikator in direkten Kontakt mit dem Meßgut gebracht; letzteres ist ein Gas oder eine Flüssigkeit, in dem/der der Sauerstoffpartialdruck zu bestimmen ist. Sauerstoffmoleküle können sehr leicht in die Silikonmatrix hineindiffundieren; der Sauerstoffpartialdruck in der Silikonmatrix stellt sich dadurch schnell auf denjenigen Wert ein, der auch im Meßgut herrscht.

Wenn die Silikonmatrix mit dem immobilisierten Indikatorfarbstoff hinreichend klein ist, braucht für den Konzentrationsausgleich zwischen Meßgut und Silikon nur wenig Sauerstoff aus dem Meßgut in die Silikonmatrix zu diffundieren. Weiterhin findet am Indikator *kein Verbrauch* des Sauerstoffs statt. Der Einfluß der Meßeinrichtung auf das Meßgut kann somit vernachlässigbar klein gehalten werden.

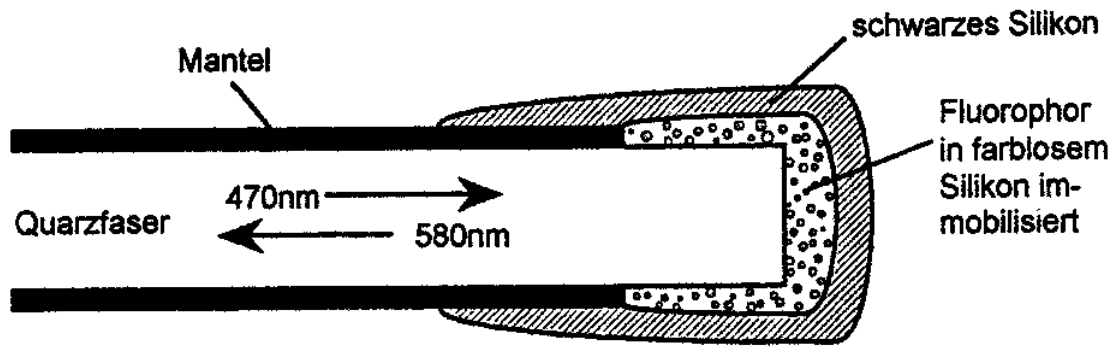


Abbildung 6.2: Schemaskizze der Spitze einer Sauerstoffoptode [64]. Auf der Spitze sitzt eine ausgehärtete Silikonschicht mit darin immobilisiertem Farbstoff. Zum Schutz vor Fremdlicht ist sie mit einer weiteren, schwarz eingefärbten Silikonhülle umgeben.

6.5.3 Meßverfahren

Das Absorptionsmaximum des Farbstoffes liegt im blauen Bereich sichtbaren Lichtes. Als billige und stabile Erregungslichtquelle eignet sich daher eine blaue Leuchtdiode. Erregungs- und Fluoreszenzlicht werden auf demselben Lichtweg geführt; das rote Fluoreszenzlicht kann durch einen dichroitischen Spiegel selektiv aus dem Strahlengang ausgekoppelt werden. (Solch ein Spiegel reflektiert nur Licht bestimmter Wellenlängen, während andere Wellenlängen ungehindert passieren.) Die Intensität des Fluoreszenzlichtes wird schließlich in einem käuflichen Sekundär-Elektronen-Vervielfacher genau quantifiziert.

Der Lichtweg zwischen dem dichroitischen Spiegel und dem immobilisierten Farbstoff in der Silikonmatrix kann durch eine flexible Lichtleitfaser nahezu beliebig verlängert werden. Die farbstoffhaltige Silikonmatrix wird dafür einfach als Tropfen auf die Spitze der Lichtleitfaser aufgebracht und härtet dort aus. Ein zusätzlicher, dünner Silikonüberzug auf der Silikonperle wird schwarz eingefärbt und schützt somit effektiv vor Fremdlicht. Abbildung 6.2 zeigt den Aufbau der Sonden Spitze („Optode“). Die Spitze der Faser kann dann an nahezu beliebige Meßorte geführt werden, um wirklich *lokale* Messungen auszuführen.

Das Gerät steht in einer vierkanaligen Version zur Verfügung. Hier werden die Fluoreszenzlichtstrahlen aus vier *Optoden* zusammengeführt und gemeinsam in den Sekundär-Elektronen-Vervielfacher geleitet. Die Erregungslichtquelle (Leuchtdiode) und der dichroitische Spiegel sind für jeden Kanal einzeln ausgeführt. Dadurch, daß jeweils nur eine Sonde zur Zeit angeregt wird, kann im periodischen Wechsel auf allen vier Kanälen gemessen werden. Abbildung 6.3 zeigt schematisch Aufbau und Strahlengang der Meßapparatur.

6.5.4 Kalibrierung

In der Realität folgt die Konzentrationsabhängigkeit der Fluoreszenz nicht genau Gleichung 6.5 - 6. In das vollständige Meßgerät ist daher eine zusätzliche Ausgleichsfunktion einprogrammiert, um die Abweichungen zu minimieren; so werden nach einfacher Zweipunktkalibrierung (sauerstofffreier Zustand und Luftsättigung) zufriedenstellende Messungen möglich.

Auf diesem Wege läßt sich aber nicht die maximal mögliche Genauigkeit der Meßmethode bei kleinsten Sauerstoffpartialdrücken ausschöpfen. Deswegen wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit eine eigene, genauere Kalibrierung mit den vier verwendeten Sonden (*Optoden*) durchgeführt.

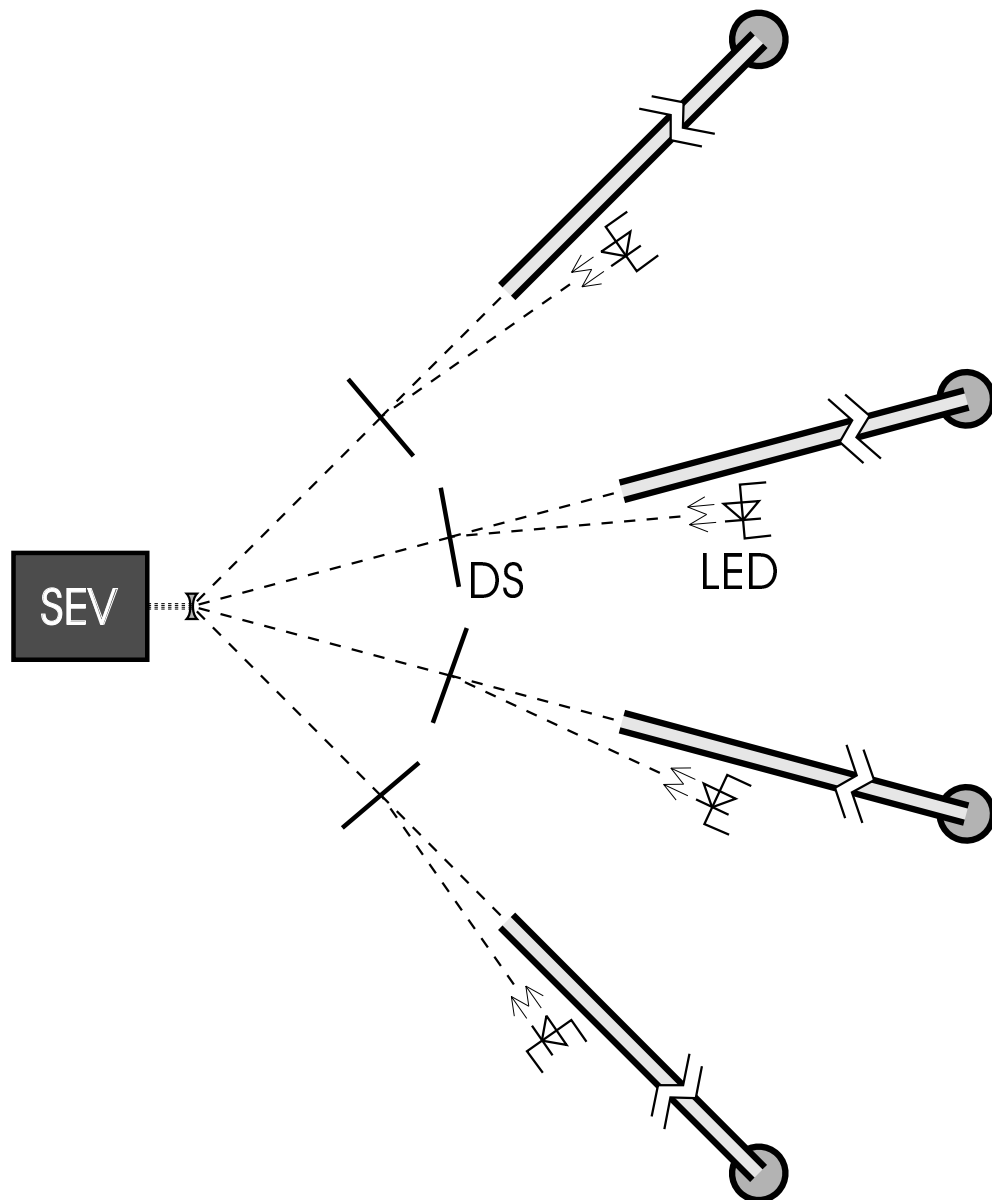


Abbildung 6.3: Schemaskizze des faseroptischen Sauerstoffsensors, in der Ausführung mit vier Kanälen. Links im Bild der Sekundär-Elektronen-Vervielfacher („SEV“); „DS“ bezeichnet einen der vier dichroitischen Spiegel, „LED“ eine der vier (blau leuchtenden) Leuchtdioden für das Erregungslicht.

Diese ist in Abschnitt 6.7.3 (Seite 131) beschrieben. Im folgenden wird erklärt, welche mathematische Funktion zur Beschreibung der gefundenen Meßwerte bei der Kalibrierung verwendet wurde.

6.5.4.1 Streulicht

Durch Abschirmung und Signalmodulation kann der Einfluß von Fremdlicht von außen weitgehend eliminiert werden. Dennoch dringt Falschlicht in den Sekundär-Elektronen-Vervielfacher. Dies erklärt sich daraus, daß das optische System, und darin besonders der dichroitische Spiegel, einen kleinen Anteil des (blauen) Erregungslichtes direkt in den optischen Sensor streut.⁵ Gleichung 6.5 - 6 (Seite 126) muß also um entsprechende Terme für den Falschlichtanteil (I_f) ergänzt werden [316]:

$$\frac{I_0 - I_f}{I - I_f} = 1 + K_{SV} \cdot p_{O_2} \quad (6.5 - 7)$$

6.5.4.2 Statische Lösung

Die Beschreibung der Fluoreszenzlöschung auf molekularer Ebene muß verfeinert werden: Das Farbstoffmolekül wird zuerst von Strahlung energetisch angeregt, und dann stößt es mit einem Sauerstoffmolekül zusammen und gibt Energie an dieses ab. Dies ist die „gewöhnliche“, dynamische Fluoreszenzlöschung.

Daneben tritt aber auch sog. *statische* Fluoreszenzlöschung auf. In diesem Fall geht das Farbstoffmolekül einen relativ stabilen Komplex mit einem Sauerstoffmolekül ein, das also permanent in seiner Nähe liegt. Auch in diesem Fall wird eingestrahlte und vom Farbstoffmolekül absorbierte Energie strahlungsfrei auf das Sauerstoffmolekül übertragen.

Beide Mechanismen der Fluoreszenzlöschung treten in der Realität nebeneinander auf. Sie lassen sich beide formal mit der STERN-VOLMER-Gleichung beschreiben (Gl. 6.5 - 6, auf Seite 126). Dabei gelten aber jeweils unterschiedliche Zahlenwerte für die STERN-VOLMER-Konstante K_{SV} ; dies führt zu einer erheblichen Abweichung vom idealen, hyperbolischen Verhalten.

CARRAWAY *et al.* (1991) [54] leiten zur vollständigen mathematischen Beschreibung dieser Tatsache folgende Gleichung ab:

$$\frac{I}{I_0} = \frac{f_1}{1 + K_{SV,1} \cdot p_{O_2}} + \frac{f_2}{1 + K_{SV,2} \cdot p_{O_2}} \quad (6.5 - 8)$$

f_1 und f_2 sind die Anteile, die die beiden Mechanismen zur gesamten Fluoreszenzintensität beitragen; ihre Summe ist gleich eins: $f_1 + f_2 = 1$. Diese Gleichung wurde um die Korrektur für Streulicht ergänzt und dann ohne Vereinfachung für alle Berechnungen eingesetzt.⁶

Die Anwendung der Kalibrierfunktion und die Ergebnisse aus der Anwendung des faseroptischen Sauerstoffsensors werden im nächsten Kapitel beschrieben.

⁵Die Quantenausbeute der Fluoreszenz ist gering, Literaturwerte für vergleichbare Farbstoffe werden mit ca. 5% angegeben [211]. Dadurch ist das Erregungslicht viel stärker als das Fluoreszenzlicht; wird von ersterem nur ein kleiner Teil in den optischen Detektor gestreut, ergibt sich ein erheblicher Meßfehler.

⁶Auflösungen und Ableitungen nach verschiedenen Variablen ergaben teilweise unübersichtliche Ausdrücke. Diese wurden mit dem Computer-Algebra-System MapleV behandelt [321]; die Berechnungen mit programmierbaren Funktionen wurden in gnuplot ausgeführt. Dieses Daten- und Funktions-plot-Programm ist das Ergebnis einer – ausschließlich über das Internet – konzertierten Projektarbeit vieler freiwilliger Programmierer. Es wird als C-Quelltext über das Internet verbreitet; weitere Informationen finden sich u.a. im Internet unter <http://www.gnuplot.org/>.

6.6 Zusammenfassung Meßtechnik

Für die experimentellen Untersuchungen wurden verschiedene Meßeinrichtungen zur Bestimmung von Sauerstoffkonzentrationen in wäßrigen Medien sowie Gasen eingesetzt. Im Reaktorabgas wurde der Sauerstoffanteil mit einem Gasanalysator gemessen, der die physikalische Eigenschaft des *Paramagnetismus* von Sauerstoff ausnutzt. Gelöstsauerstoffkonzentrationen wurden mit einer amperometrischen Sauerstoffelektrode nach CLARK sowie mit einem phaseroptischen Sauerstoffsensor gemessen. Letzterer nutzt als Meßprinzip die Auslöschung der Fluoreszenz bestimmter Farbstoffe in der Gegenwart von Sauerstoffmolekülen. Der hyperbolische Zusammenhang zwischen Fluoreszenzintensität und Sauerstoffpartialdruck macht dieses Prinzip besonders geeignet für die Messung kleinster Sauerstoffkonzentrationen in einer sauerstofflimitierten Fermentation, wie sie in dieser Arbeit angestrebt wurden.

6.7 Kalibrierung

Vor der Durchführung der Messungen in einer realen Fermentation wurden alle verwendeten Meßeinrichtungen genauestens kalibriert. Ausführung und besondere Ergebnisse dieser Arbeiten werden im folgenden wiedergegeben.

6.7.1 Clark-Elektrode

Zu Beginn der experimentellen Arbeiten wurde zunächst die Linearität der vorhandenen CLARK-Sauerstoff-Elektrode untersucht. Sie wurde zuerst mindestens 24 Stunden am Meßverstärker angeschlossen und voll polarisiert. Dann wurde mit reinem Stickstoff und reiner Luft sorgfältig kalibriert. Die Elektrode war dabei in Betriebsposition im Versuchsreaktor eingebaut, der für dieses Experiment mit vollentsalztem Wasser gefüllt war. Zur Vermeidung von Temperatureffekten wurde der Reaktor auch für die Kalibrierung konstant auf 37°C temperiert.

Anschließend wurde vom Prozeßleitreechner die Zusammensetzung des Gasstromes in periodischem Wechsel auf folgende Luftanteile eingestellt: 0%; 4,7%; 16%; 27%; 43%; 59%; 80%; 100%. Jede Konzentration wurde für 45 Minuten gehalten; nur die Begasung mit reinem Stickstoff dauerte jeweils 75 Minuten, um wirklich hinreichende Sauerstofffreiheit zu erreichen. Die Luftanteile 0% und 100% sind exakte Werte, weil beide Gasflußregler eine Möglichkeit besaßen, den Gasstrom zuverlässig vollständig zu sperren. Die anderen Werte sind keine runden Zahlen, weil der eine Gasflußregler nicht genau die (analog) vorgegebenen Sollwerte traf. Es wurden aber jeweils nur die gemessenen Istwerte zur genauen Berechnung der realen Konzentrationen verwendet.

Das (relative) Meßsignal der CLARK-Elektrode in diesem Experiment ist in Abbildung 6.4 über dem Luftanteil in der Begasung dargestellt. Man erkennt eine sehr befriedigende Linearität; die beiden Gasflußregler und die CLARK-Elektrode können also – bei Verwendung in reinem Wasser – als zuverlässig angesehen werden.

6.7.2 Gasanalysator

Zur Beschreibung des Stoffaustausches zwischen Gasblasen und Flüssigkeit muß der Sauerstoffanteil in den Gasblasen bekannt sein. Um diesen abschätzen zu können, wurde während der vermessenen Fermentation auch der Sauerstoffanteil im Fermentationsabgas kontinuierlich gemessen. Das verwendete Meßgerät (Oxygor 610) ist in Abschnitt 6.3 (Seite 120) beschrieben.

Zur Kalibrierung des Gasanalysators wurde bei der oben beschriebenen Überprüfung der CLARK-Elektrode kontinuierlich die Gaszusammensetzung gemessen. Zu den geringfügig nichtli-

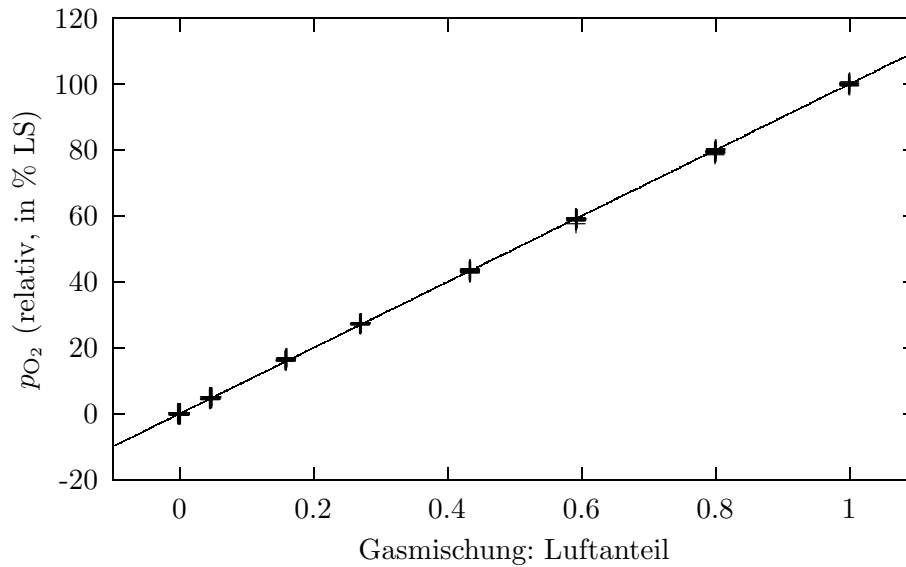


Abbildung 6.4: Überprüfung der Linearität von CLARK-Elektrode und Gasflußreglern; vgl. Abschnitt 6.7.1. Auf der Ordinate ist der von der CLARKElektrode gemessene, relative Sauerstoffpartialdruck angegeben (100% entspricht Luftsättigung beim Betriebsdruck im Reaktor). Auf der Abszisse ist der Luftanteil in der Begasung angegeben. Neben (insgesamt) **185 einzelnen Meßwerten** ist (als dünn gestrichelte Linie) der ideale, lineare Zusammenhang beider Größen eingezeichnet.

nearen Meßdaten wurde (mit einer nichtlinearen Regressionsanalyse) eine geeignete polynomische Korrekturfunktion dritten Grades entwickelt. Die mit dieser Funktion korrigierten Daten sind, analog zur Darstellung in Abbildung 6.4, in Abbildung 6.5 graphisch aufgetragen.⁷ Auch die Messung des Sauerstoffanteils im Abgas kann also als zuverlässig angesehen werden.

6.7.3 Faseroptischer Sauerstoffsensor

Im Rahmen der vielstufigen Kalbriermessung, die in Abschnitt 6.7.1 beschrieben ist, wurden auch Kalibrierdaten für den faseroptischen Sauerstoffsensor aufgenommen. Die vier *Optoden* waren im Versuchsreaktor installiert, und die Detektorsignale des Sekundär-Elektronen-Vervielfachers wurden zusammen mit den anderen Daten vom Prozeßleitrechner aufgezeichnet. Die Daten wurden in der Einheit „Volt“ ausgegeben und sind in Abbildung 6.6 auf Seite 132 dargestellt.

6.7.3.1 Regressionsanalysen

In Abbildung 6.6 ist für jede Sonde der Graph einer analytischen Ausgleichsfunktion für die Meßpunkte eingetragen. Die Funktionen entsprechen jeweils der Kombination aus Gleichung 6.5 - 7 (Seite 129) und Gleichung 6.5 - 8 (Seite 129). Die Funktionsparameter wurden jeweils durch nicht-lineare Optimierung des Parametersatzes mit dem MARQUARDT-LEVENBERG-Algorithmus gewonnen, wie er in gnuplot implementiert ist (vgl. Fußnote 6 auf Seite 129). Jede Kurve wird von fünf

⁷Mit derselben Funktion wurden selbstverständlich auch alle bei den eigentlichen Messungen gewonnenen Daten korrigiert.

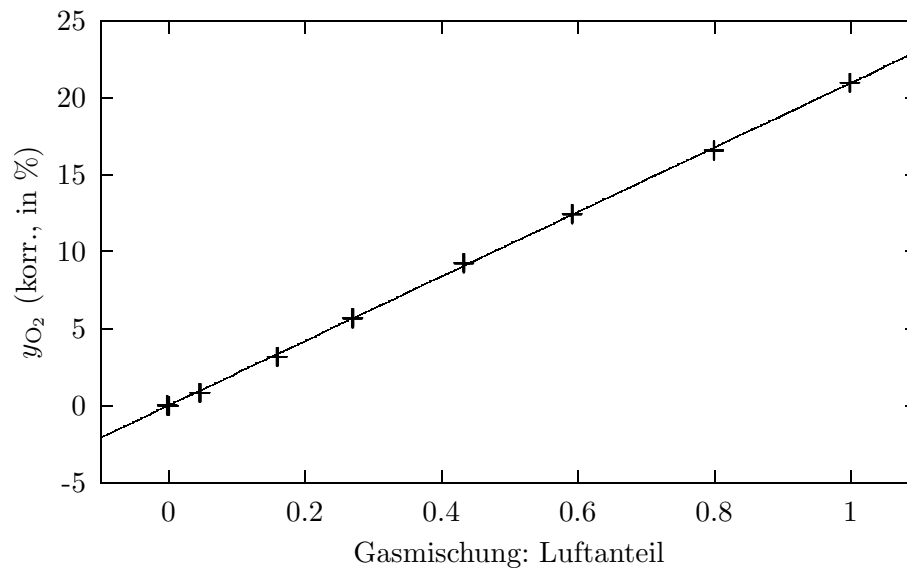


Abbildung 6.5: Die Meßdaten vom Sauerstoff-Gasanalysator („Oxygor“) bei der vielstufigen Kalibrierungsmessung, die in Abschnitt 6.7.1 (Seite 130) beschrieben ist. Auf der Ordinate ist der gemessene Sauerstoffanteil angegeben; auf der Abszisse ist der von den Gasflußreglern eingestellte (und von der CLARK-Elektrode verifizierte) Luftanteil im Gasstrom aufgetragen. Neben (insgesamt) 185 einzelnen (korrigierten, s. Text) Meßwerten ist (als dünn gestrichelte Linie) der ideale, lineare Zusammenhang beider Größen eingezeichnet.

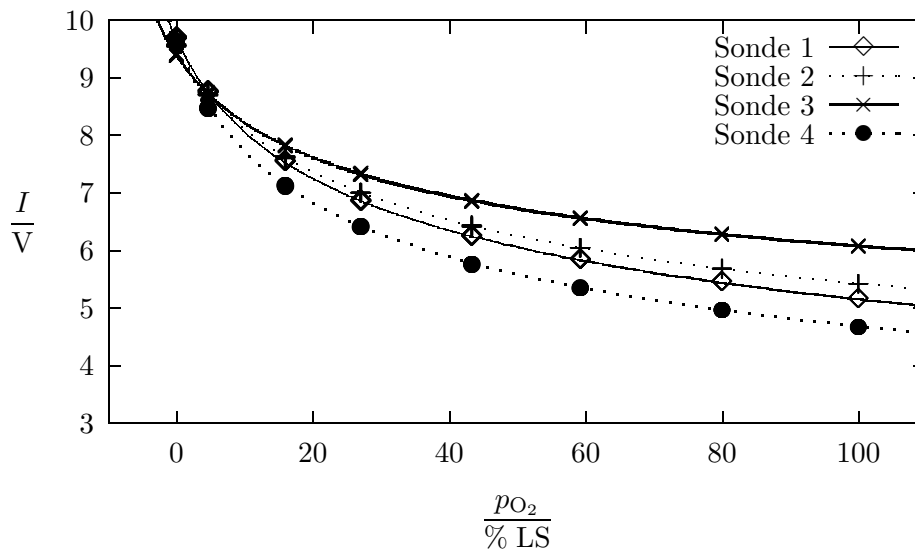


Abbildung 6.6: Die Detektorsignale vom faseroptischen Sauerstoffsensor, die bei der vielstufigen Kalibrierungsmessung aufgenommen wurden, wie sie in Abschnitt 6.7.1 (Seite 130) beschrieben ist. Für jede der vier einzelnen Sonden („Optoden“) ergibt sich ein eigener Kurvenverlauf. Auch hier stehen wieder für jede Optode (insgesamt) 185 einzelne Datenpunkte zur Verfügung. (Für weitere Details vgl. Abbildung 6.5, und den Text.)

Tabelle 6.1: Die Parameter für die mathematische Funktion zur Beschreibung der Meßsignale des faseroptischen Sauerstoffsensors (vgl. Abschnitt E.6.1, auf Seite 213).

Optode	I_0	I_f	$K_{SV,1}$	$K_{SV,2}$	f_1
I	9,68	2,58	0,0642	0,00684	0,503
II	9,56	3,55	0,0751	0,01195	0,423
III	9,40	4,60	0,0658	0,01057	0,501
IV	9,61	2,46	0,0797	0,00938	0,508

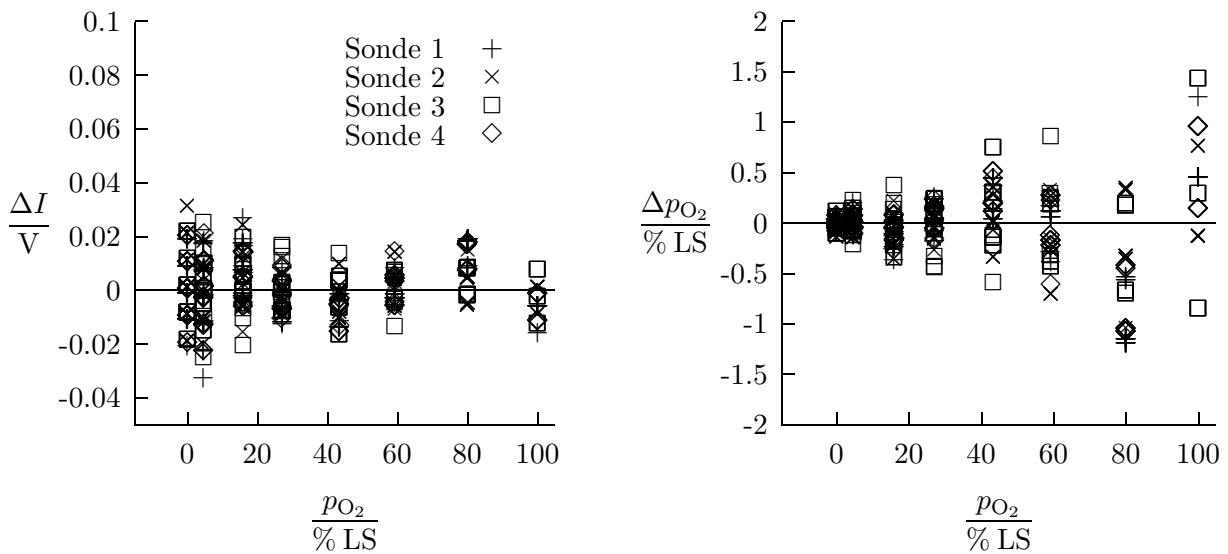


Abbildung 6.7: Die Streuung der (insgesamt 740) einzelnen Meßwerte aus Abbildung 6.6 von den zugehörigen Ausgleichsfunktionen. Links sind die Abweichungen in Volt angegeben; dies ist die Einheit der Ausgabesignale des Sensors (Ordinate in Abbildung 6.6). In der rechten Darstellung sind die Werte entsprechend der jeweiligen lokalen Steigung der Ausgleichsfunktion in Konzentrationsunterschiede (Abweichungen für p_{O_2}) umgerechnet.

freien Parametern bestimmt: I_0 , I_f , $K_{SV,1}$, $K_{SV,2}$ und f_1 . ($f_2 \stackrel{!}{=} 1 - f_1$). Für eine optimale Beschreibung der Meßwerte, und damit des Verhaltens der Optoden, war es nötig, alle Werte für jede Optode separat zu bestimmen. Die gefundenen Werte sind in Tabelle 6.1 aufgeführt.

Abschnitt E.6.1 (Seite 213) im Anhang enthält eine detaillierte Diskussion dieser Werte und der Anwendung des faseroptischen Sauerstoffsensors im Allgemeinen.

6.7.3.2 Meßwertstreuung

In Abbildung 6.7 sind die Abweichungen der gemessenen Einzelwerte in der Kalibrierung von den ermittelten Ausgleichskurven dargestellt. Sie sind zum einen als Abweichungen in Volt, also der Einheit des Ausgabesignales vom Sauerstoffsensor, dargestellt. Außerdem sind diese Abweichungen über die jeweilige (lokale) Steigung der Ausgleichskurve in Konzentrationsdifferenzen (Abweichungen des p_{O_2} -Wertes in Prozent) umgerechnet worden. Drei Tatsachen sind zu erkennen:

- Die Abweichungen sind überall ungefähr symmetrisch um den entsprechenden Schätzwert der Ausgleichsfunktion verteilt.
- Die Abweichungen der Meßwerte für die Fluoreszenzintensität liegen überall in derselben Größenordnung. Sie entstammen also dem Meßgerät und sind vom gemessenen Wert unabhängig.
- Durch die Krümmung der Ausgleichskurve sind die Abweichungen der berechneten Gelöstsauerstoffkonzentrationen (Partialdrücke, p_{O_2}) bei kleinen Meßwerten (nahe null) sehr klein. Die Meßtechnik eignet sich daher besonders für die genaue Messung kleinster Gelöstsauerstoffkonzentrationen.

6.7.4 Zusammenfassung Kalibrierung

Vor den nachfolgend beschriebenen Messungen an einer Fermentation wurden die verwendeten Meßeinrichtungen (vgl. Abschnitt 6.6, auf Seite 130) sorgfältig kalibriert. Die Linearität und Kohärenz der Meßwerte von Gasflußreglern, CLARK-Elektrode und Abgasanalysator untereinander wurden nachgewiesen.

Während dieser Kalibrierung wurden große Mengen Daten für die Kalibrierung der vier Meßkanäle des phaseroptischen Sauerstoffsensors gesammelt. Aus diesen Daten wurden durch numerische Parameteroptimierung Kalibrierfunktionen gewonnen. Die Analyse der Streuung der einzelnen Meßpunkte um die Kalibrierfunktionen zeigt, daß...

- keine systematischen Fehler existieren,
- die Streubreite der ursprünglichen Meßwerte nur geringfügig vom jeweiligen Meßwert abhängt, und deswegen
- der stochastische Fehler in den gemessenen Gelöstsauerstoffkonzentrationen besonders bei kleinsten Sauerstoffkonzentrationen sehr klein wird.⁸

Somit erweist sich der phaseroptische Sauerstoffsensor als besonders geeignet für die *lokale*, verbrauchs- und damit *rückwirkungsfreie* Messung *kleinster* Gelöstsauerstoffkonzentrationen in Bioreaktoren.⁹

6.8 Fermentation

Zur Validierung des entwickelten numerischen Modells wurde in einer näherungsweise mikroaeroben Fermentation an mehreren Positionen im Bioreaktor die lokale Sauerstoffkonzentration gemessen. Dabei wurden sauerstofflimitierte Prozeßzustände unter reiner Oberflächenbegasung sowie unter vollständiger Blasen- und Oberflächenbegasung eingestellt und untersucht.

6.8.1 Organismus

Der Mikroorganismus in der Kultivierung war *Klebsiella pneumoniae*. Diese gram-negativen Enterobakteriaceen verfügen über aerobe und anaerobe Stoffwechselfähigkeiten. Weiterhin hat für

⁸Dies ist bemerkenswert, weil die nativen Anzeigewerte des Sensors bei geringsten Sauerstoffkonzentrationen am größten sind.

⁹Um die optimale Genauigkeit des Meßgerätes bei kleinsten Sauerstoffkonzentrationen auszunutzen, muß allerdings eine aufwendige Kalibrierung, wie in dieser Arbeit beschrieben, ausgeführt werden.

Tabelle 6.2: Die Zusammensetzung des Vor- und Stammkulturmediums für *Klebsiella pneumoniae*. Als Lösungsmittel diente deionisiertes Wasser.

Glyzerin, 87%ig	23,5 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
K ₂ HPO ₄	3,4 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
KH ₂ PO ₄	1,3 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
(NH ₄) ₂ SO ₄	2,0 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
MgSO ₄ ·7 H ₂ O	0,2 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
Hefeextrakt	1,0 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
FeSO ₄ ·7 H ₂ O ^a	5,0 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
CaCl ₂ ^b	2,0 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
Spurenelementlösung Nr. 7 ^c	2,0 $\frac{\text{ml}}{\text{l}}$
CaCO ₃ ^d	2,0 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$

^aZugegeben als 0,1 Vol.-% einer Lösung von 5 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$ FeSO₄·7 H₂O in Wasser mit 0,4 Vol.-% konzentrierter Salzsäure.

^bZugegeben als 0,1 Vol.-% einer Lösung von 2 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$ CaCl₂ in Wasser.

^cSiehe Tabelle 6.3, auf Seite 136.

^dAls unlöslicher Bodenkörper.

sie die Mikroaerobiose eine besondere Bedeutung. Sie besitzen nämlich die Fähigkeit, molekularen Stickstoff zu fixieren, d.h. in den eigenen Stoffwechsel einzuschleusen. Dieser Vorgang setzt, neben einem speziellen Enzym (Nitrogenase), viel Energie voraus; die kann normalerweise nur unter aeroben Bedingungen aus geeigneten Substraten gewonnen werden.

Gleichzeitig ist aber die Nitrogenase empfindlich gegenüber hohen Sauerstoffpartialdrücken. Deswegen schützt sich *Klebsiella pneumoniae* gegen übermäßigen Sauerstoffzutritt durch Ausbildung einer dicken Schleimkapsel. Diese Schleimbildung wird bei rein anaerober Kultivierung nicht beobachtet¹⁰; sie wird also durch die Gegenwart von Sauerstoff induziert. Die Schleimkapsel bildet eine Diffusionsbarriere um jede einzelne Zelle; mit hochaffinem, intensivem Sauerstoffverbrauch im Zellinneren kann so der Sauerstoffpartialdruck (bei kontinuierlichem Sauerstoffzustrom) gering gehalten werden.

6.8.2 Kultivierung

6.8.2.1 Vor- und Stammkultur

Der Mikroorganismenstamm wurde unter der Katalognummer DSM 2026 von der Deutschen Stammsammlung für Mikroorganismen und Zellkulturen (DSMZ, in Braunschweig) bezogen. Er ist identisch zum Stamm ATCC 15380 von der „american type culture collection“ und auch unter dem Namen *Klebsiella aerogenes* bekannt.

Zur Kultivierung in Erlenmeyerkolben wurde ein Komplexmedium auf der Grundlage von Glyzerin als Kohlenstoff- und Energiequelle verwendet. Die Zusammensetzung ist in Tabelle 6.2 angegeben. Das Medium wurde zum Lösen aller Substanzen kurz aufgekocht, zu jeweils 20 ml in 100 ml-Erlenmeyerkolben mit Schikanen und Überfallkappe gefüllt und autoklaviert. Zur Kultivierung wurde mit einem Aliquot Bakterien inokuliert und über Nacht bei 37°C unter langsamem Schütteln inkubiert.

Zur Herstellung von Stammkonserven wurden jeweils 2 ml gut gewachsene Kultur mit jeweils 10 Vol.-% sterilem Glyzerin versetzt und dann über längere Zeit bei -70°C gelagert.

¹⁰Persönliche Mitteilung aus der Laborgruppe An-Ping Zeng, GBF Braunschweig.

Tabelle 6.3: Die Zusammensetzung der Spurenelementlösung Nr. 7, die im Vor- und Stammkulturmedium gemäß Tabelle 6.2 eingesetzt wurde. Als Lösungsmittel diente deionisiertes Wasser.

HCl, konz.	0,9 $\frac{\text{ml}}{\text{l}}$
ZnCl ₂	70,0 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
MnCl ₂ ·4 H ₂ O	100,0 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
H ₃ BO ₃	60,0 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
CoCl ₂ ·6 H ₂ O	200,0 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
CuCl ₂ ·2 H ₂ O	20,0 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
NiCl ₂ ·6 H ₂ O	25,0 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
Na ₂ MoO ₄ ·2 H ₂ O	35,0 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$

Tabelle 6.4: Die Zusammensetzung des Fermentationsmediums nach TAG [305]. Als Lösungsmittel diente deionisiertes Wasser.

Glyzerin, 87%ig	2,35 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
NaH ₂ PO ₄ ·2 H ₂ O	1,38 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
(NH ₄) ₂ SO ₄	6,61 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
Na ₂ SO ₄	0,28 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
MgCl ₂ ·6 H ₂ O	0,26 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
CaCl ₂ ·2 H ₂ O	2,9 $\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
Citronensäure (·1 H ₂ O)	0,42 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
Hefeextrakt	1,0 $\frac{\text{g}}{\text{l}}$
Spurenelementlösung „Evans“ [305] ^a	5,0 $\frac{\text{ml}}{\text{l}}$

^aSiehe Tabelle 6.5.

6.8.2.2 Hauptkultur

Die Fermentation wurde in einem Fermentationsmedium nach TAG [305] ausgeführt. Die Zusammensetzung ist in Tabelle 6.4 angegeben. Das Medium wurde im Reaktor angemischt und mit diesem *in situ* bei 121°C 15 Minuten sterilisiert. Zur Vermeidung von extremer Schaumbildung wurde vorher ein halber Milliliter des Anti-Schaum-Mittels „Desmophen“ (Bayer AG, Leverkusen) zugesetzt. Nach Erreichen der Fermentationstemperatur von 37°C wurde mit 40 ml gut gewachsener Vorkultur inokuliert.

Der Reaktor war mit Thermometer und Thermostatisierung, pH-Elektrode (Schott) und CLARK-Sauerstoffelektrode ausgerüstet. Zusätzlich waren die vier phaseroptischen Sauerstoffsonden installiert (s.u., Abschnitt 6.8.3.1). Die Begasungsleitung führte über getrennte Massenstromregler (Fa. MKS) Luft und Stickstoff zusammen; die Zuluft (bzw. Gasmischung) konnte wahlweise durch den Begaserring in die Flüssigkeit oder durch ein Rohr in den Gasraum über der freien Flüssigkeitsoberfläche geführt werden. In der Abgasleitung waren Schaumfalle, Sauerstoff- und Kohlendioxidanalysator (Maihak Oxygor 610 und Unor 610) installiert. Geometrie und Anordnung der Einbauten im Reaktor sind in Abschnitt 5.1 auf Seite 87 beschrieben.

6.8.3 Experimente

Es wurden an einer Fermentation verschiedene Zustände bezüglich der Sauerstoffversorgung eingestellt. Dann wurden jeweils die gesamte Sauerstoffverbrauchsrate und die lokalen Konzentrationen

Tabelle 6.5: Die Zusammensetzung der Spurenelementlösung „Evans“, die im Fermentationsmedium gemäß Tabelle 6.4 eingesetzt wurde. Als Lösungsmittel diente deionisiertes Wasser.

HCl, konz.	10,0	$\frac{\text{ml}}{\text{l}}$
FeCl ₂ ·6 H ₂ O	5,4	$\frac{\text{g}}{\text{l}}$
MnCl ₂ ·4 H ₂ O	2,0	$\frac{\text{g}}{\text{l}}$
ZnCl ₂	0,61	$\frac{\text{g}}{\text{l}}$
CoCl ₂ ·6 H ₂ O	0,47	$\frac{\text{g}}{\text{l}}$
CuCl ₂ ·2 H ₂ O	170,0	$\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
H ₃ BO ₃	60,0	$\frac{\text{mg}}{\text{l}}$
Na ₂ MoO ₄ ·2 H ₂ O	5,0	$\frac{\text{mg}}{\text{l}}$

an gelöstem Sauerstoff an verschiedenen Positionen im Reaktor gemessen.

6.8.3.1 Meßpositionen

Die Meßpositionen wurden durch den Einbau der vier faseroptischen Sauerstoffsonden an unterschiedlichen Stellen im Reaktor festgelegt. Zur Auswahl dieser Positionen wurden Ergebnisse einer frühen Simulationsrechnung zu Grunde gelegt. Zu deren Zeitpunkt war das Modell noch nicht voll entwickelt; es fehlten u.a. die Simulation der Blasenverteilung (Abschnitt 5.3.3.1, auf Seite 104) und die Umfangsmittelung des Stofftransportes über die Bereichsgrenze (Abschnitt 5.4.4.1, auf Seite 114). Daher hatten die Simulationsergebnisse noch nicht den später erreichten Charakter.

An zwei Positionen zeigten sich in den numerischen Voruntersuchungen *Extrema* der Gelöstsauerstoffkonzentration: Unmittelbar unter der Flüssigkeitsoberfläche, nahe der Rührerwelle, wurde die höchste Konzentration vorausgesagt. Hier wurde Meßposition 1 angelegt. Ganz unten im Reaktor, genau in der Rotationssymmetrieachse, wurde die niedrigste Konzentration vorausgesagt. Hier wurde Meßposition 2 eingerichtet.

Für die Auswahl weiterer Positionen war zu beachten, daß die Optoden nicht direkt im Rührerbereich liegen konnten, und daß sie an vorhandenen feststehenden Einbauten fixiert werden mußten. Es wurden daher zwei Positionen an einem Strömungsbrecher gewählt: Auf der Anströmseite, jeweils zwei Zentimeter ober- und unterhalb der Rührerebene. Dies sind die Meßpositionen 3 und 4. Die vier Meßpositionen sind in Abbildung 6.8 eingetragen.

6.8.3.2 Ablauf

Der Ablauf der Fermentation ist in Abbildung 6.9 auf Seite 139 dargestellt. Als durchgezogene Linie ist die Differenz des Sauerstoffanteils in Zu- und Abluft dargestellt (positive, sichtbare Werte bedeuten Sauerstoffverbrauch im Reaktor). Weiterhin sind in vier anderen Linienzügen die gemessenen Sauerstoffkonzentrationen an den vier faseroptischen Sonden eingetragen. In dünnen Punkten ist schließlich das Signal der CLARK-Elektrode im zeitlichen Verlauf dargestellt.

Erste Limitierung. Nach Equilibrierung aller Meßsignale bei *Oberflächenbegasung* mit Luft wurde zum Zeitpunkt $t = 0,3\text{h}$ mit einer vitalen Impfkultur inokuliert. Die Gelöstsauerstoffkonzentration begann sofort zu fallen, bis sich ein erstes Gleichgewicht zwischen Verbrauch und Stoffübergang bei ungefähr $t = 0,6\text{h}$ einstellte. Die Kultur und ihr Sauerstoffverbrauch wuchsen aber stetig zunehmend, so daß die Gleichgewichtskonzentration des gelösten Sauerstoffes mit zunehmender Rate abfiel. Kurz nach $t = 2,0\text{h}$ wurde Sauerstofflimitierung erreicht. Hier zeigen sich nun an den

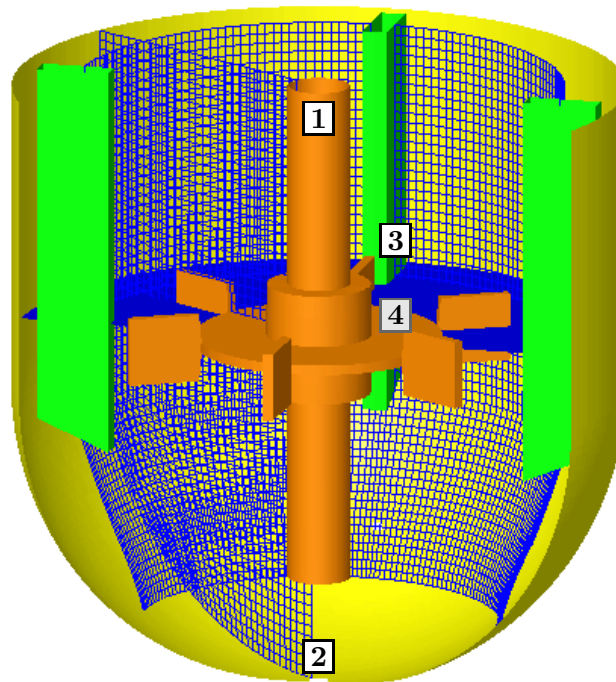


Abbildung 6.8: Die Einbaupositionen der faseroptischen Sauerstoffsonden; der Rührer dreht sich im Gegenuhrzeigersinn. Die Sonden **3** und **4** liegen auf der Anströmseite des Strömungsbrechers, um jeweils ca. 1 mm von seiner Oberfläche abgehoben. Sonde **4** ist in der Darstellung eigentlich von der Rührerscheibe verdeckt.

Zusätzlich sind als Gitternetze drei Schnittflächen eingezeichnet, auf denen in nachfolgenden Abbildungen verschiedene Simulationsergebnisse dargestellt werden.

unterschiedlichen faseroptischen Sauerstoffsonden unterschiedliche (lokale) Sauerstoffkonzentrationen. Deren Werte werden weiter unten diskutiert.

Clark-Elektrode. Außerdem fällt auf, daß das Signal der CLARK-Elektrode sofort bei Erreichen der Sauerstofflimitierung beginnt, kontinuierlich zu steigen. Vor der Inokulation war die Elektrode bei Sauerstofffreiheit auf 0% LS (Luftsättigung) kalibriert worden. In der sauerstofflimitierten Fermentation steigt ihr Signal innerhalb von 20 Minuten auf ca. 7% LS an. Die anderen Sonden zeigen dagegen konstante Sauerstoffkonzentration an. Es muß also angenommen werden, daß die CLARK-Elektrode hier massiv auf die Bildung von Gärungsprodukten reagiert.

Nachkalibrieren. Nach Erreichen der bestmöglichen Signalkonstanz wurde die Begasung auf Stickstoff – nun einschließlich Blasenbegasung durch den Begaserring – umgestellt; dadurch konnten die Signale aller Sonden bei echter Sauerstofffreiheit aufgezeichnet werden. Durch Vergleich der Meßsignale mit diesen zeitnah gewonnenen Kalibrierwerten kann in der Auswertung (s.u.) optimale Genauigkeit der Meßergebnisse erzielt werden.

Metabolische Vielfalt. Nach kurzer Zeit wurde die (Blasen-) Begasung von Stickstoff auf Luft umgestellt. Die Gelöstsauerstoffkonzentration stieg fast unverzüglich auf 40% LS bis 50% LS an. Nach 10 bis 15 Minuten stieg sie abrupt um weitere 5% LS an. Dies entspricht einer Abnahme

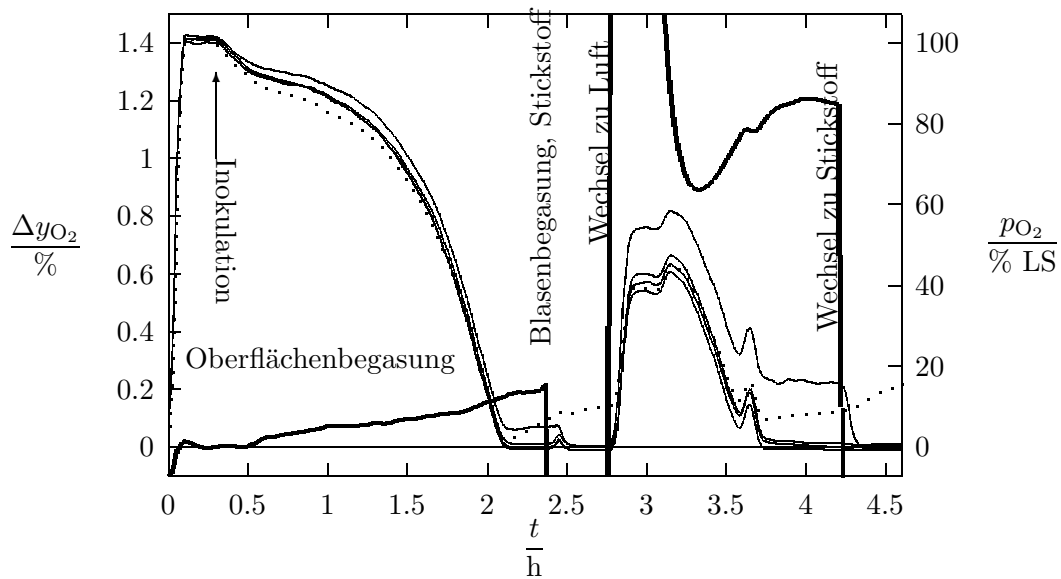


Abbildung 6.9: Der Ablauf der Fermentation. Die durchgezogene Kurve zeigt die Differenz der Sauerstoffanteile in Begasungs- und Abluft (positive Werte entsprechen Sauerstoffverbrauch im Reaktor). Vier weitere Kurven zeigen die p_{O_2} -Signale der vier faseroptischen Sauerstoffsonden. Dünn gepunktet ist schließlich das Signal der CLARK-Elektrode im zeitlichen Verlauf dargestellt.

der Atmungsaktivität der Kultur. (Vermutlich wurden bei Wiederbeginn der Begasung zunächst leicht abbaubare Gärungsprodukte abgebaut; nach der Erschöpfung dieser Vorräte wurde auf ein schlechter resorbierbares Substrat [vermutlich Glycerin] umgestellt.)

Die Kultur wuchs kontinuierlich weiter, und trotz der (wesentlich intensiveren) Blasenbegasung fiel die Sauerstoffkonzentration kontinuierlich weiter ab. Kurz vor dem Erreichen erneuter Sauerstofflimitierung, bei $t = 3,6\text{h}$, setzte der Sauerstoffverbrauch kurzzeitig aus; hier fand offensichtlich eine erneute Umstrukturierung des bakteriellen Stoffwechsels statt. (Induktion hochaffiner Oxidasen [vgl. Abschnitt E.2.1, auf Seite 205]?)

Zweite Limitierung Nach dem kurzen Aussetzen der Atmungsrate läuft die Kultur in eine erneute Sauerstofflimitierung. An den faseroptischen Sonden stellen sich wiederum konstante Sauerstoffkonzentrationen ein; das Signal der CLARK-Elektrode beginnt wiederum, unsinnig zu steigen. Nach Erreichen hinreichender Signalkonstanz wurde erneut auf Stickstoffbegasung umgeschaltet, um verlässliche Vergleichswerte für eindeutige Sauerstofffreiheit zu bekommen. (Dieser Kalibrierungs-Eckpunkt läßt sich in einer Kultur, die vorübergehende Anaerobiose toleriert, auch während der Fermentation herstellen. Der andere Eckpunkt, nämlich Luftsättigung, läßt sich ohne Abtöten oder Entfernen der Kultur nicht einstellen; deswegen muß das spätere „Nachkalibrieren“ während der Fermentation auf eine Einpunktkalibrierung beschränkt bleiben.)

6.8.3.3 Ergebnisse

In der Auswertung der Meßergebnisse war das Ziel, möglichst genaue Werte für die Gelöstsauerstoffkonzentration in den Phasen echter Sauerstofflimitierung zu erhalten. Deswegen wurden jeweils Vergleichswerte für echte Sauerstofffreiheit produziert. Zu diesen wurde jeweils mit den gemessenen

Tabelle 6.6: Die gemessenen Gelöstsauerstoff-Konzentrationen an den vier faseroptischen Sonden, jeweils in der Einheit: „% Luftsättigung“. Die Werte sind jeweils als Differenz zum Meßwert bei echter Sauerstofffreiheit (Stickstoffbegasung) angegeben.

Sonde	Oberflächenbegasung	Blasenbegasung
1	4,7	15,3
2	0,1	-0,06
3	0,4	0,72
4	0,2	0,36

Werten eine Differenz gebildet, die dann als wahre Sauerstoffkonzentration in der Meßsituation anzusehen ist.¹¹

Die gefundenen „wahren“ Sauerstoffkonzentrationen an den vier faseroptischen Gelöstsauerstoffsonden (1 bis 4) sind in Tabelle 6.6 aufgelistet. Die Werte für Oberflächenbegasung wurden beim Zeitpunkt $t \approx 2,6$ h ermittelt; die Werte für Blasen- (+ Oberflächen-) -begasung wurden bei $t \approx 4,2$ h gewonnen.

Verbrauchsdaten. Aus den Sauerstoff-Konzentrations-Differenzen zwischen Zu- und Abluft konnte jeweils, unter Einbeziehung des Gasvolumenstromes ($2 \frac{1}{\text{min}}$), die *Sauerstoffverbrauchsrate* der Kultur in den beiden untersuchten Zuständen errechnet werden. Diese Werte werden sinnvoll auf das Kultur- (Flüssigkeits-) -volumen bezogen. Für die beiden Zustände, jeweils unmittelbar vor dem Wechsel zur Stickstoffbegasung, ergeben sich:

Für die *Oberflächenbegasung*: $18 \frac{\mu\text{g}}{\text{l}\cdot\text{s}}$
 Für die *Blasenbegasung*: $114 \frac{\mu\text{g}}{\text{l}\cdot\text{s}}$

Diese Verbrauchsdaten wurden unter vollständiger Sauerstofflimitierung gemessen. Gemäß der Quasistationaritätsannahme muß die (integrale) Sauerstoffübertragungsrate jeweils genau dasselbe Ausmaß gehabt haben [326]. Nimmt man eine verschwindend geringe Sauerstoffkonzentration in der Flüssigkeit an ($c_{l,\text{O}_2} \approx 0$), so ergibt sich aus Gleichung 2.3 - 12 (Seite 22) näherungsweise:

$$\text{OTR} \approx \beta_l a \cdot c_l^* \quad (6.8 - 9)$$

Vernachlässigt man außerdem die Sauerstoffverarmung im Gas ($c_{g,\text{O}_2} = c_{g,\text{O}_2,\text{ein}}$), so kann die Sättigungskonzentration c_l^* durch die Löslichkeit von Sauerstoff in der Flüssigkeit (bei 1 atm) ersetzt werden. Somit können die o.g. Werte direkt in Werte für den volumetrischen Stoffaustauschkoefizienten $\beta_l a$ übersetzt werden.

Die Löslichkeit von Sauerstoff im Medium wurde nach den Angaben in [284, 285] auf $7,0 \frac{\text{mg}}{\text{l}}$ festgesetzt. Somit ergeben sich aus den o.g. Zahlen folgende volumetrische Sauerstoffübergangskoeffizienten $\beta_l a$:

Für die *Oberflächenbegasung*: $0,00257 \text{ s}^{-1}$
 Für die *Blasenbegasung*: $0,01629 \text{ s}^{-1}$

Diesen Zahlen werden im folgenden Abschnitt Werte aus einfachen, dynamischen $\beta_l a$ -Messungen gegenübergestellt.

¹¹Diese Differenzbildung ist, streng betrachtet, nur dann erlaubt, wenn der Zusammenhang zwischen Fluoreszenzintensität und Konzentration linear ist. In dem engen Bereich zwischen den gemessenen Werten bei Luft- und Stickstoffbegasung kann diese Voraussetzung als näherungsweise gegeben gelten.

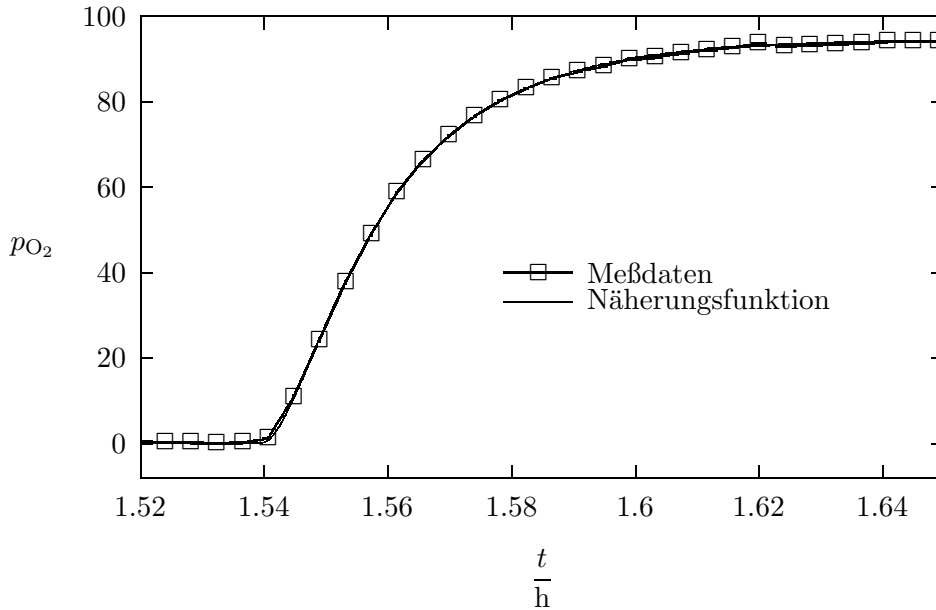


Abbildung 6.10: Der zeitliche Verlauf der (mit der CLARK-Elektrode gemessenen) Gelöstsauerstoffkonzentration bei einer Bestimmung des $\beta_1 a$ -Wertes nach der dynamischen Begasungswechselmethode.

6.8.4 Dynamische $\beta_1 a$ -Messung

Während der Kalibrierungsmessungen für die Sauerstoffsonden (im bereits sterilisierten Fermentationsmedium) wurde mehrfach zwischen Luft- und Stickstoffbegasung gewechselt. Dies wurde für einfache, dynamische $\beta_1 a$ -Messungen ausgenutzt.

Für die Messungen wurde die im Reaktor eingebaute CLARK-Sauerstoffelektrode benutzt, weil weitere Vorversuche gezeigt hatten, daß sie erheblich *schneller* reagierte als die faseroptischen Sauerstoffsonden. Da noch keine Stoffwechselprodukte von Bakterien im Medium waren, zeigte die CLARK-Elektrode auch ein reproduzierbares, eindeutig brauchbares Verhalten.

6.8.4.1 Meßdatenbehandlung

Abbildung 6.10 zeigt den gemessenen Konzentrationsverlauf nach dem Wechsel von Stickstoff- auf Luftbegasung. Dargestellt sind alle Meßpunkte des Zeitintervalls sowie der Graph einer Näherungsfunktion. Diese Funktion entspricht der mathematischen Beschreibung für eine Serienschaltung zweier Verzögerungsglieder erster Ordnung. Die Gleichung dieser Funktion wird in Anhang D.4 (Seite 200) hergeleitet. Sie enthält fünf Parameter: Die Start- und Endkonzentration ($c_{l,0}$ und c_l^*), den Startzeitpunkt t_0 , die Zeitkonstante τ der Sauerstoffelektrode und die inverse Zeitkonstante $\beta_1 a$ für den eigentlichen Stoffaustauschvorgang.

Für die aufgenommenen Meßdaten konnten alle fünf Parameter aus jeder einzelnen Meßreihe mit einer nichtlinearen Regressionsanalyse ermittelt werden. Diese wurde jeweils mit dem Programm **gnuplot**¹² nach dem MARQUARDT-LEVENBERG-Algorithmus ausgeführt. Es handelt sich um eine „*least squares fitting*“-Methode; sie entspricht einem Optimierungsalgorithmus, der die aktuellen Parameter so lange variiert, bis die Summe der quadrierten Abweichungen jedes einzelnen Meßpunktes von der Funktion ihren kleinstmöglichen Wert annimmt.

¹²Siehe Fußnote 6 auf Seite 129.

6.8.4.2 Ergebnisse

Für die reine Oberflächenbegasung wurde ein Wert für den volumetrischen Stoffaustauschkoefizienten β_{la} von $0,0022 \text{ s}^{-1}$ gefunden. Dieser Wert liegt um ca. 16% unter demjenigen aus der stationären Messung (in Abschnitt 6.8.3.3, auf Seite 140). Dies dürfte auf Unsicherheiten bei der Messung der Sauerstoffanteile in der Reaktorabluft während der stationären Messung zurückgehen. Da hier eine sehr kleine Differenz zwischen zwei vergleichsweise großen Werten ausgenutzt werden muß, kann ein Driften des Meßgerätes und der wahren Zusammensetzung der Zuluft leicht zu solchen Fehlern führen.

Bei der Blasenbegasung (mit $\dot{V}_g = 2 \frac{1}{\text{min}}$) ergab sich für den volumetrischen Stoffaustauschkoefizienten ein Mittelwert von $\beta_{la} = 0,014 \text{ s}^{-1}$. Die Abweichung vom Wert aus der stationären Messung (Verweis wie oben) beträgt hier etwa 12%. Das Anwachsen der Werte in der Auswertung der stationären Messung mindert die Unsicherheit aus der Differenzbildung zwischen zwei großen Beträgen. Für die Zeitkonstante der Elektrode wurden Werte zwischen 9 s und 14 s gefunden; die größeren Werte gelten hierbei für den Wechsel von Stickstoff nach Luft, die kleineren entsprechend für den umgekehrten Fall.

6.9 Zusammenfassung

Die ersten zwei Teile dieses Kapitels wurden bereits andernorts zusammengefaßt: Eine kurzgefaßte Beschreibung der verwendeten Meßtechnik findet sich in Abschnitt 6.6 (Seite 130); die ausgeführten Arbeiten zur Kalibrierung und Überprüfung der verwendeten Meßgeräte auf Genauigkeit und Tauglichkeit wurde in Abschnitt 6.7.4 (Seite 134) subsummiert.

Im verbleibenden Teil des Kapitels wurden die ausgeführten Messungen an einer (mikro-) aeroben Fermentation von *Klebsiella pneumoniae* beschrieben. Es wurden sauerstofflimitierte Prozeßzustände unter reiner Oberflächenbegasung sowie unter vollständiger Blasen- und Oberflächenbegasung eingestellt und mit den eingesetzten Meßeinrichtungen quantitativ dokumentiert. Die ortsabhängigen Gelöstsauerstoffkonzentrationen sowie die tatsächlichen Sauerstoffübertragungs- und -verbrauchsrate („OTR“ und „OUR“) wurden für die untersuchten Prozeßzustände aufgezeichnet. Mit diesen Daten werden im folgenden Kapitel entsprechende Simulationsrechnungen einer Validierung unterzogen.

Kapitel 7

Simulationsergebnisse

In diesem Kapitel sollen die Ergebnisse numerischer Simulationen, die jeweils zur Beschreibung der experimentell untersuchten Fermentationszustände¹ ausgeführt wurden, mit den experimentellen Ergebnissen verglichen werden.

Anschließend wird aufgezeigt, welche weitergehenden Informationen und *Voraussagen* mit dem entwickelten Modell, über die zur Validierung betrachteten Ergebnisse hinaus, gewonnen werden können.

7.1 Vorgehensweise

Bei der Ausführung der numerischen Simulationen für die experimentell erfaßten Prozeßzustände war die Ermittlung verschiedener Modellparameter notwendig. Die gesamte Vorgehensweise bei der Berechnung der numerischen Voraussagen mit dem entwickelten Modell wird im folgenden dargestellt.

7.1.1 Flüssigkeitsströmung

Im Prozeß hatte der Rührer eine Drehzahl von 180 Umdrehungen in der Minute; dieser Wert wurde auch für die Strömungssimulation eingesetzt. Die Drehung war (real wie in der Simulation) im Gegenurzeigersinn.

Das Medium enthielt außer Glycerin keine Substanzen, die wesentlichen Einfluß auf die Viskosität haben. In [103, Bd. A12, Eintrag “*Glycerol*”] finden sich Daten für die Viskosität von Glycerin (zitiert aus [207]). Danach hat eine 2%-ige Lösung von Glycerin in Wasser bei 37°C eine Viskosität von ungefähr 0,9 mPa·s. Mit diesem Wert wurde die Flüssigkeitsströmung berechnet. Die Dichte wurde näherungsweise mit $1000 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$ angenommen.

Der Rührer hat bei einem Durchmesser von 128 mm und einer Drehzahl von 3 Umdrehungen je Sekunde eine REYNOLDSzahl von ungefähr $\text{Re}_R = \frac{n \cdot d^2 \cdot \rho}{\mu} = 50.000$. Die Strömung muß also als voll turbulent angenommen werden, so daß die Anwendung des k, ϵ -Modelles sinnvoll ist.

Die Ergebnisse der Strömungssimulation für die reine Flüssigkeit sind in Abschnitt 5.2.3 (Seite 95) ausführlich dargestellt und sollen hier nicht wiederholt werden.

¹Siehe Abschnitt 6.8.3, auf Seite 136.

7.1.2 Gasblasenströmung

Zur Simulation der Gasblasenströmung war die Festlegung bestimmter Parameter notwendig. Zunächst mußte ein Blasendurchmesser der am Begaserring neu entstehenden Blasen definiert werden. Nach einer Abschätzung per Augenschein am gläsernen Versuchsreaktor wurde ein Anfangsdurchmesser der Gasblasen von 2 Millimetern eingesetzt.

Dieser Parameter ist aber relativ unbedeutend. Die Blasen gehen auf direktem Weg vom Begaser zum Rührer und werden dort von der turbulenten Flüssigkeitsströmung zerteilt. Die Lebensdauer der ursprünglichen, größeren Blasen ist also sehr begrenzt; ihr Beitrag zum Stoffaustausch ist daher gering.

Die Größe der späteren Blasen hängt von einem anderen Parameter ab, der weiter unten behandelt wird (Abschnitt 7.1.2.2).

7.1.2.1 Ohne Zerteilung

In einer früheren Entwicklungsstufe des Modelles blieb die turbulenzbedingte Blasenzerteilung unberücksichtigt. Es wurde für alle Blasen im Berechnungsgebiet überall derselbe Blasendurchmesser verwendet. (Er wurde dann auch auf die – real deutlich größeren – ursprünglichen Blasen angewendet, die direkt vom Begaserring kommen und noch nicht den Rührer passiert haben.) Dieser konstante Blasendurchmesser wurde so eingestellt, daß die mittlere Blasenverweilzeit in der Simulation derjenigen entsprach, die sich aus Gasvolumenstrom und gemessenem Gasvolumenanteil ergab.²

Die gemessene mittlere Blasenverweilzeit $\bar{\tau}_g$ ergab sich nach Gleichung 2.3 - 14 (Seite 22) zu $\bar{\tau}_g = 3,7[+1,5/-1,0]$ Sekunden.³ Sie war bei Gasvolumenströmen zwischen 0 und 5 Litern je Minute vom Gasvolumenstrom unabhängig. (Der relative Gasvolumenanteil $\varepsilon_g = \frac{V_g}{V}$ war proportional zum Gasvolumenstrom \dot{V}_g .) Der für die Simulation ermittelte einheitliche Blasendurchmesser betrug 0,5mm. Dieser Wert ist aber nicht ein SAUTERdurchmesser (d_{32}), sondern nach Stückzahl gewichtet (d_{10} , vgl. Abschnitt 2.2.3.1 auf Seite 17). Deswegen ist er erheblich kleiner als viele Literaturwerte. Eindeutig stückzahlgewichtete Literaturwerte liegen in derselben Größenordnung [29, 184, 306, 308].⁴

7.1.2.2 Mit Zerteilung

Später wurde das beschriebene Modell für die Blasenzerteilung in das Modell eingeführt (s. Abschnitt 5.3.3.1, auf Seite 104). Damit war, neben dem Durchmesser für die ursprünglichen Blasen (s. Abschnitt 7.1.2), ein Wert für die kritische WEBERzahl $We_{krit.}$ nötig. Dieser wurde genauso bestimmt wie vorher der einheitliche mittlere Blasendurchmesser (s. den vorigen Abschnitt).

Es ergab sich, daß eine kritische WEBERzahl von $We_{krit.} = 6,85 \frac{mN}{m} \cdot \sigma^{-1}$ in der Simulation zu der gemessenen mittleren Blasenverweilzeit führte. Theoretisch hergeleitete Literaturwerte liegen (nahe) unterhalb des Wertes 1 [126]; das ergibt für die Oberflächenspannung des vollständigen

²Der Gasvolumenanteil wurde durch Ablesung des Flüssigkeitsstandes am gläsernen Reaktor mit und ohne Begasung bestimmt. Der Rührer lief in beiden Fällen mit der vorgegebenen Drehzahl. Die dadurch bedingten Schwankungen des Flüssigkeitsstandes mußten per Augenschein ausgemittelt werden.

³Zur Ermittlung dieses Wertes wurde der Flüssigkeitsstand im gerührten Reaktor bei verschiedenen Begasungsraten \dot{V}_g abgelesen. Daraus ergaben sich Volumendifferenzen, die direkt dem dispersen Gasvolumen V_g zuzuschreiben waren.

⁴In den zitierten Arbeiten wurde teilweise in Systemen mit starker Blasenkoaleszenz gearbeitet. In diesem Fall darf natürlich nur mit den veröffentlichten Blasengrößenverteilungen unmittelbar im Ausströmbereich des Rührers verglichen werden.

Fermentationsmediums (einschließlich Antischaummittel) einen Wert von etwas mehr als $7 \frac{\text{mN}}{\text{m}}$. Dieser Wert wird in Abschnitt 5.3.3.3 auf Seite 105 näher diskutiert.

7.1.3 Stoffaustausch

Für die Berechnung des Stoffaustausches wurden die Gleichungen 5.4 - 3 (Seite 108) und 5.4 - 8 (Seite 116) verwendet. Für den molekularen Diffusionskoeffizienten \mathcal{D} von Sauerstoff im Kulturmedium wurde aus der Literatur der Wert $\mathcal{D} = 2,48 \cdot 10^{-9} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$ entnommen [10, 122, 220, 272].

7.1.3.1 Blasengrenzfläche

Für den Stoffaustausch an der Phasengrenzfläche von Blasen wurde Gleichung 5.4 - 3 (Seite 108) benutzt. Hier wirken nur die relativ kleinen Turbulenzwirbel (maximal selbe Größenordnung wie der Blasendurchmesser), die von der Turbulenzbeschreibung nach KOLMOGOROV gut erfaßt werden:

$$\beta_l = B_{\beta_l} \cdot \left(\frac{\mathcal{D}}{\nu} \right)^{b_{\mathcal{D}}} \cdot \sqrt[4]{\nu \cdot \epsilon} \quad (7.1 - 1)$$

In Abschnitt 6.8.3.3 (Seite 140) wurden *gemessene* Sauerstoffverbrauchsrate für die Oberflächen- und die kombinierte Oberflächen- und Blasenbegasung angegeben. Mit diesen (integralen) Meßwerten konnte u.a. die Proportionalitätskonstante B_{β_l} in Gleichung 7.1 - 1 an die Realität angepaßt werden.

In der Simulation ergab sich die gemessene Sauerstoffübertragungsrate, wenn die Proportionalitätskonstante auf den Wert 0,167 eingestellt wurde. Der Exponent $b_{\mathcal{D}}$ wurde dabei, wie für kleine Blasen sinnvoll, mit dem Zahlenwert $\frac{2}{3}$ belegt.

Der theoretische Wert für die Proportionalitätskonstante in der zitierten Gleichung ist $\frac{2}{\sqrt{\pi}} = 1,13$. Der allgemein anerkannte (und vielfach zitierte) Literaturwert aus [52] und [150] beträgt dagegen nur 0,13; der hier bestimmte Wert (0,167) liegt also nahe am Literaturwert.

7.1.3.2 Freie Oberfläche

Für den Stoffaustausch an der freien Oberfläche wurde hingegen Gleichung 5.4 - 8 (Seite 116) verwendet:

$$\beta_l = B_{\beta_l} \cdot \left(\frac{\mathcal{D}}{\nu} \right)^{b_{\mathcal{D}}} \cdot \sqrt{\frac{\nu \cdot \epsilon}{2 \cdot k}} \quad (7.1 - 2)$$

Hier leisten nämlich, nach neueren Untersuchungen [216], die großen Turbulenzwirbel den Hauptbeitrag zum Stoffaustausch. Diese können nur durch die mathematische Beschreibung erfaßt werden, die die kinetische (spezifische) Turbulenzenergie k enthält, weil diese nämlich vorwiegend in den relativ *großen* Turbulenzwirbeln liegt.

Für den Exponenten $b_{\mathcal{D}}$ in der zitierten Gleichung wurde der Wert $\frac{1}{2}$ eingesetzt; für ebene, freie Oberflächen ist in der Literatur vorwiegend dieser Wert zu finden. Die Proportionalitätskonstante in Gleichung 7.1 - 2 wurde dann so angepaßt, daß sich in der Simulation die gemessene Sauerstoffübertragungsrate (für den Fall reiner Oberflächenbegasung) ergab. Die Proportionalitätskonstante B_{β_l} nahm dabei den Wert 4,67 an; der theoretische Wert in der zitierten Gleichung ist $\frac{2}{\sqrt{\pi}} = 1,13$.

7.1.3.3 Literaturvergleich

In [266] wird für das “*large eddy model*” folgende Gleichung einschließlich gemessener Proportionalitätskonstante [48] angegeben:

$$\beta_l = 0,9 \cdot \sqrt{\frac{D \cdot v'}{\Lambda}} \quad (7.1 - 3)$$

Hier läßt sich das Ausmaß der turbulenten Geschwindigkeitsschwankungen v' durch die Funktion $\sqrt{2 \cdot k}$ der lokalen (spezifischen) Turbulenzenergie k ersetzen (vgl. Abschnitt 4.1.3.1, auf Seite 60).

Für eine voll entwickelte turbulente Rohrströmung wurde dimensionsanalytisch, unter Verwendung des k, ϵ -Modells (s. Abschnitt 4.2.3, auf Seite 70), folgende Beziehung gewonnen (vgl. auch Gleichung 4.1 - 17, auf Seite 59):

$$\Lambda = C_\mu^{\frac{3}{4}} \frac{k^{\frac{3}{2}}}{\epsilon} \quad (7.1 - 4)$$

Hierin ist C_μ eine empirisch gewonnene Konstante mit dem Wert $C_\mu = 0,09$.⁵

Hiermit kann (wg. $0,09^{\frac{3}{4}} \approx 0,16$) die charakteristische Großwirbelgröße Λ durch den Ausdruck $0,16 \cdot \frac{k^{\frac{3}{2}}}{\epsilon}$ ersetzt werden. Aus Gleichung 7.1 - 3 wird somit:

$$\beta_l = 0,9 \cdot \sqrt{\frac{D \cdot \sqrt{2 \cdot k}}{0,16 \cdot \frac{k^{\frac{3}{2}}}{\epsilon}}} \quad (7.1 - 5)$$

$$= 2,68 \cdot \sqrt{\frac{D \cdot \epsilon}{k}} \quad (7.1 - 6)$$

Überträgt man den oben genannten Wert der Proportionalitätskonstante von 4,67 aus den ausgeführten Simulationsrechnungen auf die Form dieser letzten Gleichung, so ergibt sich (statt des dortigen Wertes 2,68) der Zahlenwert $\frac{4,67}{\sqrt{2}} = 3,3$.

Statt der oben zitierten Proportionalitätskonstante 0,9 in Gleichung 7.1 - 3 findet man in [97] den experimentellen Wert 1,46 und den theoretisch hergeleiteten Wert 1,12. Dies ergibt als Literaturwerte zum Vergleich mit dem in dieser Arbeit ermittelten Zahlenwert von 3,3 (in Gleichung 7.1 - 6) die Zahlenwerte 4,3 und 3,3. Der gefundene Wert entspricht mithin sehr gut dem Spektrum an verfügbaren Literaturwerten für das “*large eddy model*”.

7.1.4 Sauerstoffverbrauch

Für den Sauerstoffverbrauch durch die suspendierten Mikroorganismen mußte ein sinnvolles kinetisches Modell eingeführt werden. Zusätzlich wurde als weitere Randbedingung (bzw. Stoffparameter) die Löslichkeit von Sauerstoff in der Kulturbrühe benötigt. Sie ergibt sich nach den ausführlichen Angaben von SCHUMPE (1982 [285] und 1993 [284]) zu ziemlich genau $7 \frac{\text{mg}}{\text{l}}$. Vergleichbare Werte wurden für Zellkulturmedien errechnet und auch gemessen [10].

In der mikroaeroben Fermentation muß von den Bakterien das hochaffine Enzymsystem zur Sauerstoffreduktion exprimiert und angewendet werden (vgl. Abschnitt E.2.1, auf Seite 205). Die Sauerstoffaufnahme sollte also bei sehr geringen Sauerstoffkonzentrationen (weit unter 1% Luftsättigung) bereits ihre Sättigung erreichen.

⁵Das später mit der Theorie der Renormalisierungsgruppen aufgestellte RNG- k, ϵ -Modell ermöglichte eine theoretische Bestimmung des Wertes zu $C_\mu = 0,0845$.

Diffusionsbarriere. Die Bakterienmembran und eine eventuell zusätzlich umgebende Schleimkapsel stellen aber eine relevante Diffusionsbarriere für den Sauerstoffzutritt in das Bakterium dar. Das führt zu einer apparent verminderten Affinität des Enzymsystems zu seinem Substrat Sauerstoff; die Aufnahmerate ist über einen vergrößerten Bereich linear proportional zur außen am Bakterium herrschenden Sauerstoffkonzentration (Partialdruck).

In der Simulation wurde deswegen ein Sauerstoffpartialdruck für halbmaximale Aufnahmerate (MICHAELIS-MENTEN-Konstante) von 0,5% Luftsättigung eingesetzt. Dies führt zu ungefähr linearer Proportionalität bis nahe 1% Luftsättigung. Die gemessenen Sauerstoffkonzentrationen liegen größtenteils in diesem Bereich (nur unmittelbar an der Oberfläche wurden deutlich höhere Werte gemessen).

Die maximale Verbrauchsrate, die für die Simulation auf das Volumen der Kulturbede bezogen wurde, wurde in den Simulationen jeweils so eingestellt, daß sich schließlich die gemessene gesamte Sauerstoffverbrauchsrate ergab.

7.1.5 Zusammenfassung

Für die Anwendung des aufgestellten numerischen Modells müssen mehrere *Modellparameter* ermittelt werden. Diese Parameter sind Charakteristika des eingesetzten Stoffsystems (einschließlich der verwendeten Mikroorganismen); deswegen sind nach einmaliger Parameterbestimmung (z.B. aus einer Laborfermentation) trotzdem *Voraussagen* für beliebige Rührer- und Behältergeometrien sowie Betriebszustände (Drehzahl, Begasungsrate) möglich.

Zuerst wird die kritische WEBERZahl für die turbulenzabhängige Blasenverteilung so eingestellt, daß sich eine Blasengrößenverteilung und eine davon abhängige Verweilzeitverteilung einstellen, die in der Simulation zu den experimentell gefundenen Gasvolumenanteilen führen.

Anschließend werden für die Gleichungen zur Berechnung des turbulenzabhängigen Stoffübergangskoeffizienten β_l an Gasblasen und freier Flüssigkeitsoberfläche Proportionalitätskonstanten ermittelt. Sie werden so eingestellt, daß die Simulation die gemessenen *globalen* („integralen“) Stoffübertragungsraten (OTR) ergibt. Die ermittelten Modellparameter zeigen sehr *gute Übereinstimmung* mit entsprechenden *Literaturwerten*.

Zuletzt wurde eine Kinetik (Konzentrationsabhängigkeit) des Sauerstoffverbrauchs durch die suspendierten Mikroorganismen festgelegt. Obwohl *Klebsiella pneumoniae* über eine hochaffine Cytochrom-Oxidase verfügt, verursacht die Schleimkapsel um jede einzelne Zelle eine scheinbar verminderte Sauerstoffaffinität der Zellen, also eine relativ hohe Konzentration halbmaximaler Sauerstoffaufnahmerate.

7.2 Ergebnisse

Im folgenden soll an ausgewählten Ergebnissen der ausgeführten Simulationsrechnungen das aufgestellte numerische Modell validiert werden.

7.2.1 Modellparameter

Die für das numerische Modell ermittelten Parameter (vgl. Abschnitt 7.1, auf Seite 143) wurden bereits bei der Diskussion Ihrer Bestimmung mit Literaturwerten verglichen. Dies gibt einen ersten Anhaltspunkt für eine Validierung des Modells:

- Die kritische WEBERZahl für die turbulenzabhängige Blasenverteilung konnte nicht unabhängig von der Oberflächenspannung angegeben werden, da für letztere keinerlei Daten

existieren. Die umgekehrte Abschätzung der Oberflächenspannung mit Hilfe eines Literaturwertes für die kritische WEBERzahl ergab einen für salz-, protein- und vor allem tensidhaltige Lösungen plausiblen Wert von ca. $7 \frac{\text{mN}}{\text{m}}$ (vgl. Abschnitt 7.1.2.2, auf Seite 144).

- Für den Proportionalitätsfaktor B_{β_l} in Gleichung 7.1 - 1 (Seite 145)⁶ wurde statt des Literaturwertes 0,13 der Wert 0,167 gefunden (Abschnitt 7.1.3.1, auf Seite 145). Der Literaturwert wurde aber aus Messungen bzw. Abschätzungen der Turbulenzintensität gewonnen, die nie die räumliche Auflösung der hier verwendeten Daten aus der numerischen Strömungssimulation erreichten. Abweichungen sind deswegen nicht unwahrscheinlich. Jedes Modell enthält Parameter, deren „korrekte“ Werte von der Art (ortsgemittelt? zeitgemittelt?) und Herkunft (Messung? Meßeinrichtung? Simulation?) der eingesetzten Daten abhängt.

Bei der Verwendung der Gleichung ist außerdem zu bedenken, daß – ausgehend von der theoretisch hergeleiteten Form (Gleichung 4.1 - 28, auf Seite 61) – die Berücksichtigung *rigider* Phasengrenzen an Blasen in tensidhaltigen Lösungen auf sehr einfache Weise eingeführt wurde (vgl. Abschnitt 4.1.3.3, auf Seite 62). Deswegen darf eine allgemeine Anwendbarkeit und Übertragbarkeit mit einheitlichen Parametern nicht mehr erwartet werden.

- Für die Gleichung zur Bestimmung des Stoffübergangskoeffizienten an der freien Flüssigkeitsoberfläche (Gleichung 7.1 - 2, auf Seite 145) wurde der Proportionalitätsfaktor $B_{\beta_l} = 3,3$ gefunden (Abschnitt 7.1.3.2, auf Seite 145). Hier sind zum Vergleich nur sehr wenige Literaturwerte verfügbar; in Abschnitt 7.1.3.3 (Seite 146) wird aber gezeigt, daß der gefundene Wert sich vorzüglich in das Spektrum dieser Literaturwerte einfügt.

7.2.2 Gasphaseneigenschaften

Die Simulation macht Voraussagen über die *Blasengrößenverteilung* und die *Blasenverweilzeitverteilung*. Diese beiden können jeweils mit Literaturdaten verglichen werden.

7.2.2.1 Blasengrößenverteilung

Abbildung 7.1 zeigt die in der Simulation vorausgesagte Größenverteilung derjenigen Blasen, die die freie Flüssigkeitsoberfläche erreichen. Die enge Häufung aller Einzelgrößen um einige wenige Werte ergibt sich daraus, daß die Blasen im Modell nur in zwei jeweils gleich große Teile geteilt werden, wenn überhaupt Blasenverteilung vorausgesagt wird. (In der Realität ist ein kontinuierliches Spektrum der Blasengrößen zu erwarten, weil reale Blasenverteilungen i.d.R. „inäqual“ sind, so daß zwei unterschiedlich große Tochterblasen entstehen.)

Die Aufsplitterung der Daten um die sechs Hauptwerte herum rührt daher, daß die Blasen bis zum Erreichen der freien Oberfläche unterschiedlich viel Sauerstoff verloren haben. Die ursprünglichen Blasen haben im Modell einen Durchmesser von 2 mm. Die Größe der tatsächlich zirkulierenden Blasen wird also ausschließlich von der turbulenzabhängigen Blasenverteilung bestimmt.

Die globale Form, Breite und Lage (!) der Blasengrößenverteilung paßt sehr gut zu Ergebnissen, die MARTIN [193] für eine begaste, gerührte Lösung von Natriumsulfat in Wasser gemessen hat.⁷ (Diese Quelle enthält, als eine von sehr wenigen überhaupt, veröffentlichte Daten über *stückzahl-gewichtete* Verteilungen.)

⁶Diese Gleichung ist identisch mit den Gleichungen 4.1 - 30 (Seite 62) und 5.4 - 3 (Seite 108).

⁷Die zitierten Verteilungen liegen ungefähr zwischen 0,1 mm und 0,7 mm. Hier wurde aber mit einem größeren Rührer bei höheren Drehzahlen gerührt.

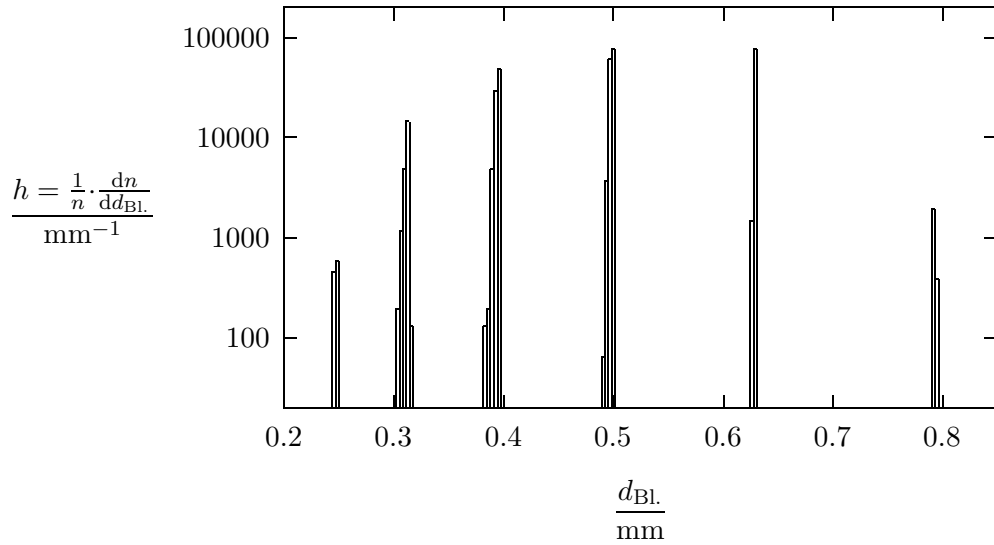


Abbildung 7.1: Die Größenverteilung der Gasblasen, die in der Simulation die freie Flüssigkeitsoberfläche erreichen. Dargestellt ist die Häufigkeitsdichte h über dem Blasendurchmesser $d_{Bl.}$. Es wurden insgesamt $n = 5072$ einzelne Trajektorien ausgewertet.

7.2.2.2 Blasenverweilzeitverteilung

Trotz der relativ schmalen, monomodalen Blasengrößenverteilung treten in der Simulation sehr unterschiedliche, teilweise auffallend lange Blasenverweilzeiten auf. Abbildung 7.2 zeigt einen kleinen Ausschnitt aus der Blasenverweilzeitverteilung als Histogramm (analog zu einer Verteilungsdichtekurve). Die höchsten (in der Simulation) gefundenen Verweilzeiten lagen bei 17 Sekunden. Die gesamte Verteilung ist in Abbildung 7.3 als Verteilungssummenkurve dargestellt.

7.2.2.3 Literaturvergleich

POPOVIC *et al.* (1983) [247] haben experimentell die Verweilzeitverteilung von Gasblasen in gerührten Flüssigkeiten untersucht. Sie fanden heraus, daß die Verweilzeitverteilung in dünnflüssigen Medien ziemlich genau einem einfachen Ersatzmodell entspricht. Dieses besteht aus einer Verzögerungsstrecke (Totzeitelement, Strömungsrohr) und einem kontinuierlich durchflossenen, ideal durchmischten Behälter (Verzögerungsglied PT_1 erster Ordnung) in einer Serienschaltung.

Die Autoren trugen Meßdaten für Verweilzeitverteilungen graphisch auf, indem als Abszisse die Verweilzeit und als Ordinate der (natürliche) Logarithmus desjenigen *Anteils* der Gasphase diente, der *mindestens* die jeweilige Verweilzeit im Reaktor erreicht. Dies entspricht, ausgehend von der Verteilungssummenfunktion H , dem Ausdruck $\ln(1 - H)$. Gemäß dem Modell ergibt sich im Bild eine abfallende Gerade; ihr Beginn ($1 - H = 1$) liegt dort, wo gerade die Verweilzeit des Totzeitelementes im Ersatzmodell erreicht ist.

Eine entsprechende Auftragung der Blasenverweilzeitdaten aus der Strömungssimulation ist in Abbildung 7.4 (Seite 151) zu sehen. (Die Kurve oben rechts ist eine dreifache Vergrößerung der anderen Auftragung, sie ist mit den Skalen rechts und oben zu lesen.) Zusätzlich ist mit jeder Auftragung eine dünne Linie eingezeichnet, die die Verweilzeitverteilung eines ideal durchmischten Behälters darstellt. Die Zeitkonstante $\tilde{\tau}$ wurde hierfür an die Daten der Simulation angepaßt; sie

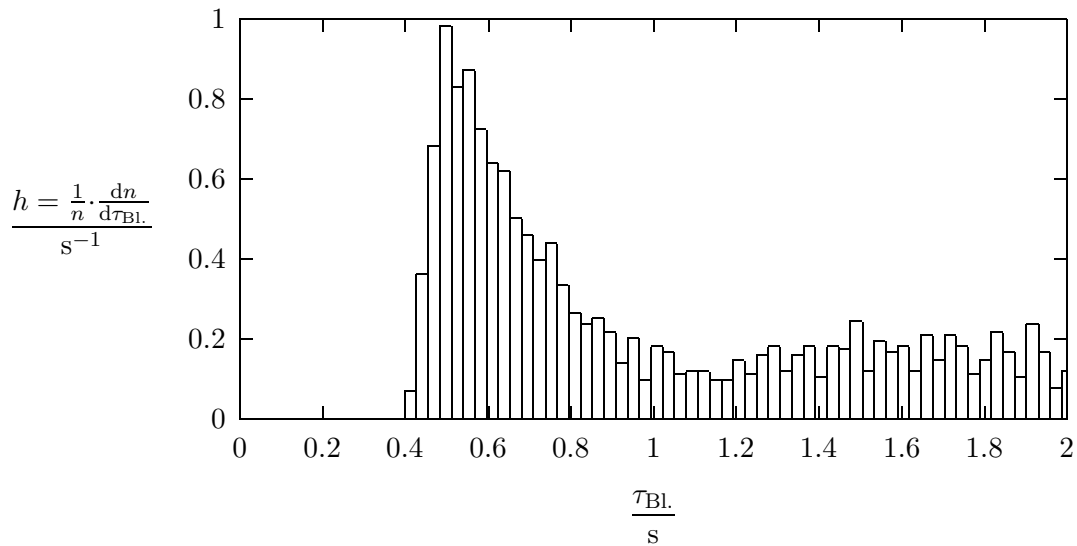


Abbildung 7.2: Die Verteilung der in der Simulation gefundenen Blasenverweilzeiten. Dargestellt ist die Häufigkeitsdichte h über der Blasenverweilzeit $\tau_{\text{Bl.}}$. (Es wurden insgesamt $n = 5072$ einzelne Trajektorien ausgewertet.)

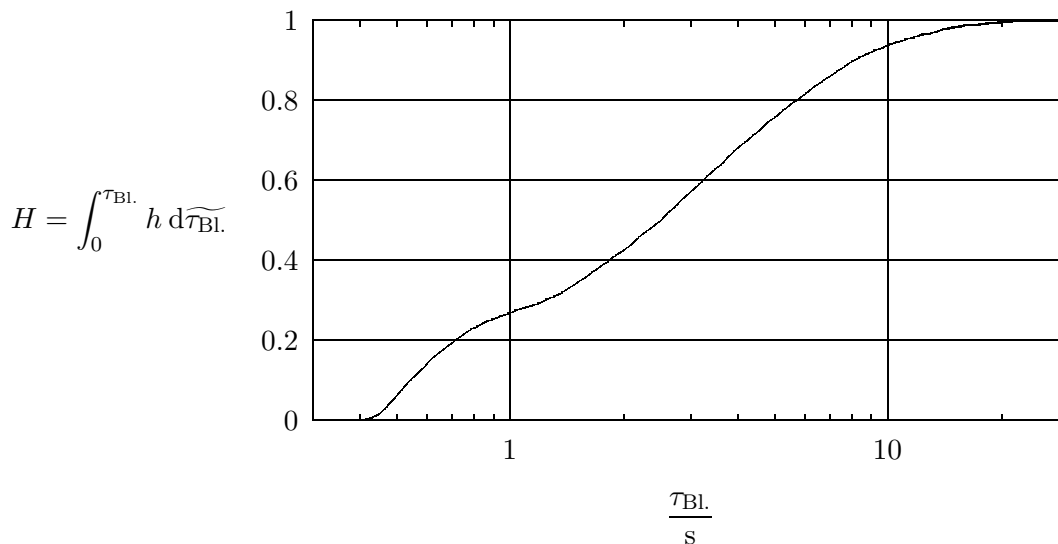


Abbildung 7.3: Die Verteilung der in der Simulation gefundenen Blasenverweilzeiten. Dargestellt ist die Häufigkeitssumme H über der Blasenverweilzeit $\tau_{\text{Bl.}}$. (logarithmisch geteilt). (Es wurden insgesamt $n = 5072$ einzelne Trajektorien ausgewertet.)

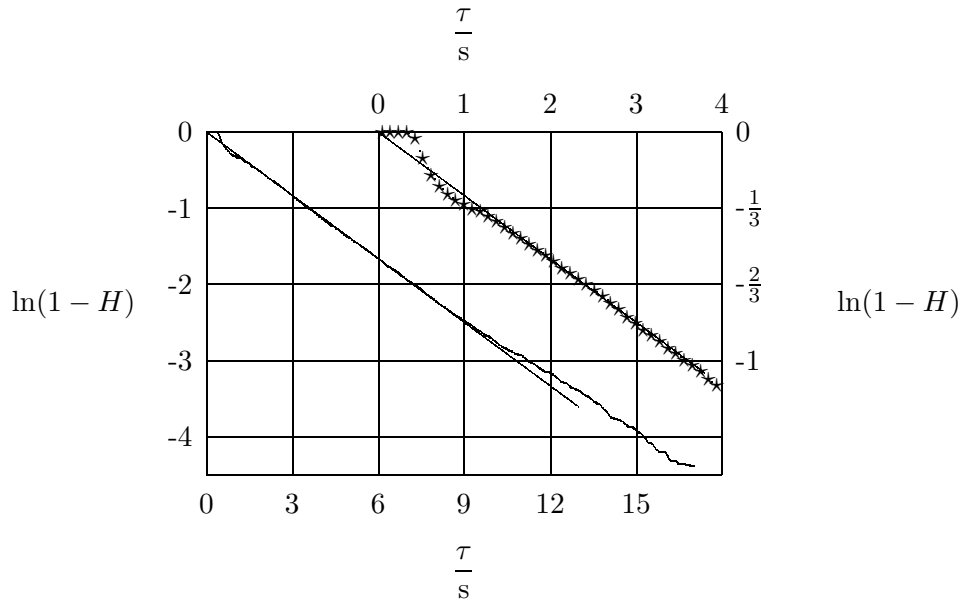


Abbildung 7.4: Die Blasenverweilzeitverteilung in der Simulation, aufgetragen gemäß POPOVIC et al. (1983) [247]. H ist die Summenfunktion der Verteilung (vgl. Abbildung 7.3). Die Daten sind zweimal eingetragen; die Kurve rechts oben ist eine dreifache Vergrößerung der anderen Auftragung, sie ist mit den Skalen rechts und oben zu lesen. Mit beiden Auftragungen ist (als dünne Linie) die Verweilzeitverteilung eines ideal durchmischten Behälters (Verzögerungsglied PT_1 erster Ordnung) eingezeichnet.

beträgt 3,6 Sekunden, was genau der mittleren Verweilzeit entspricht. (Bei der mittleren Verweilzeit $\bar{\tau}$ beträgt der Wert auf der Ordinate genau -1.)

7.2.2.4 Beurteilung

Der Vergleich im vorigen Abschnitt zeigt, daß das Verhalten der Gasphase in der Simulation ziemlich genau einem ideal durchmischten Behälter entspricht. Genau dieses Ergebnis ist experimentell für die Begasung niederviskoser, newtonscher Medien gefunden worden. Die zitierten Autoren (POPOVIC et al., 1983 [247]) arbeiten mit einem Modell, daß zusätzlich ein Totzeitelement enthält. Sie weisen aber auf eine hohe Meßunsicherheit bezüglich der Totzeit hin, weil Strömungsverweilzeiten im Gasweg der Meßapparatur nicht genau bekannt waren.

Im Bereich kleinster Verweilzeiten zeigt sich natürlich eine Abweichung vom ideal durchmischten Behälter; auch die schnellsten Blasen brauchen eine Gewisse Zeit zur Durchquerung des Flüssigkeitsvolumens. Die Form der Abweichung in der graphischen Auftragung ähnelt solchen Ergebnissen, die die oben zitierten Autoren für eine höherviskose, nichtnewtonsche Fermentationsbrühe (*Penicillium chrysogenum*) gemessen haben [247]; ihr Ausmaß ist aber viel geringer.

7.2.2.5 Diskussion

Simulation und Literaturdaten zeigen, daß teilweise sehr lange Verweilzeiten einzelner Gasblasen auftreten. Das führt zu einer breiten Verteilung der Gasblasenzusammensetzung (Sauerstoffanteil) an jedem Punkt im Reaktor. Vereinfachende Annahmen, wie sie für integrale $\beta_I a$ -Bestimmungen i.d.R. gemacht werden, verlieren dabei ihren Sinn.

Tabelle 7.1: Die simulierten Gelöstsauerstoffkonzentrationen an den Positionen der vier Sauerstoffsonden (in der Einheit: „% Luftsättigung“). Die zugehörigen Meßwerte finden sich in Tabelle 6.6 auf Seite 140.

Sonde	Oberflächenbegasung	Blasenbegasung
1	3,8	3,15
2	0,065	0,0
3	0,41	0,61
4	0,23	0,49

Simulationen, die die disperse Gasphase als ein Kontinuum ansehen (EULER/EULER- und andere Kontinuumsmodelle für Mehrphasenströmungen), erlauben an jedem Ort im Reaktor (Bilanzkontrollvolumen) nur *eine* einheitliche Zusammensetzung der Gasphase. Die besonderen Transportvorgänge auf Grund der breiten Verteilung des Sauerstoffgehaltes der Gasblasen bleiben dabei unberücksichtigt.

Das in dieser Arbeit verwendete EULER/LAGRANGE-Modell erlaubt, daß sich in einem kleinen Bereich eines Reaktors (Bilanzkontrollvolumen) verschiedene Blasen sehr unterschiedlichen Alters gleichzeitig aufhalten können. Diese besitzen dann auch sehr unterschiedliche Sauerstoffanteile. Die daraus resultierenden Stoffaustausch- und -transportvorgänge können somit (nur) vom EULER/LAGRANGE-Modell realistisch abgebildet werden.

7.2.3 Konzentrationsprofile

Im folgenden werden, in graphischen Darstellungen, die vorausgesagten Raumprofile für die Gelöstsauerstoffkonzentration (und andere Größen) in verschiedenen Situationen gezeigt.

In jeder Simulation wurde die maximale Sauerstoffaufnahme der Kultur (Produkt aus Biomassekonzentration und spezifischer maximaler Sauerstoffaufnahme) so eingestellt, daß sich die gemessene globale („integrale“) Sauerstoffverbrauchsrate ergab. Die Werte für die globalen Sauerstoffaufnahmeleistungen sind in Abschnitt 6.8.3.3 auf Seite 140 angegeben.

Jede Darstellung zeigt Farbschattierungen auf drei Schnittflächen im Simulationsgebiet. Diese drei Flächen sind in Abbildung 6.8 (Seite 138) dargestellt, wo auch die Positionen der vier faseroptischen Sauerstoffsensoren eingezeichnet sind.

7.2.3.1 Oberflächenbegasung

Zunächst wurde der experimentell untersuchte Fall der Oberflächenbegasung simuliert. Die vorausgesagten Sauerstoffkonzentrationen in der Flüssigkeit sind in Abbildung 7.5 dargestellt. Für die vier Meßpositionen ergeben sich aus der Simulation die Sauerstoffkonzentrationen, die in Tabelle 7.1 in der linken Spalte aufgelistet sind.

Beurteilung Der Vergleich mit den Meßwerten (Tabelle 6.6, auf Seite 140) zeigt, daß die Form des räumlichen Konzentrationsprofils von der Simulation gut wiedergegeben wird. Die Abweichungen sind, relativ gesehen, klein, und die Richtung der Konzentrationsgradienten ist durchgehend korrekt. Die Abweichungen liegen nahe der Größenordnung des anzunehmenden Fehlers bei der Messung. Die Simulation ist also in der Lage, die räumliche Verteilung der Gelöstsauerstoffkonzentration im Reaktor bei Oberflächenbegasung vorauszusagen.

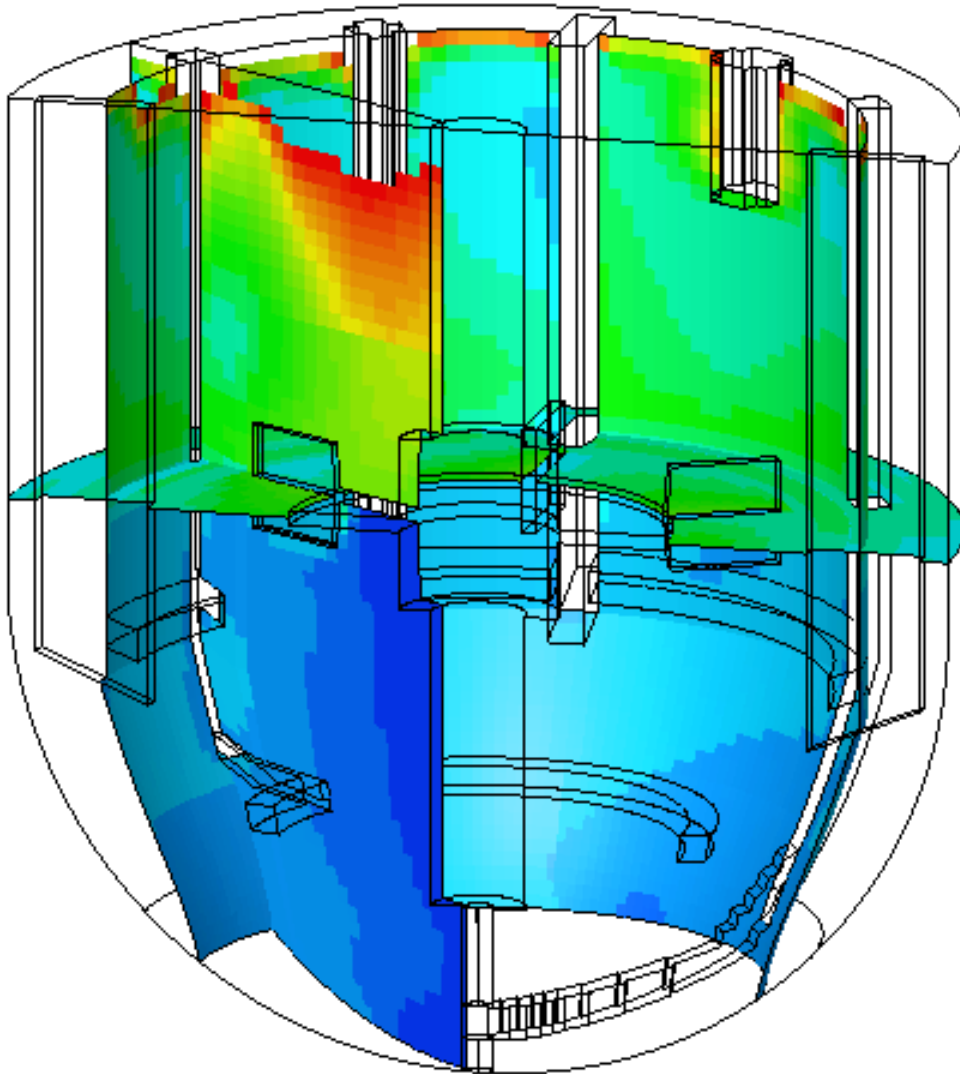


Abbildung 7.5: Das **Sauerstoffkonzentrationsprofil** in der Flüssigkeit, das von der Simulation für den Fall **reiner Oberflächenbegasung** vorausgesagt wurde. (Abbildung 6.8 auf Seite 138 veranschaulicht die Lage der dargestellten Farbflächen im Reaktor.) Die Farbskala entspricht genau derjenigen in Abbildung E.1 (Seite 209); die gezeigten Werte liegen hier zwischen 0% LS und 1,5% LS (Luftsättigung). (Die mittlere Sauerstoffübertragungs- und -verbrauchsrate beträgt $18 \frac{\mu\text{g}}{\text{l}\cdot\text{s}}$.)

Eine Abweichung, die deutlich über dem Meßfehler liegt, fällt für Meßposition **1**, also unmittelbar unter der freien Oberfläche, auf. Hier zeigt sich, daß die Wahl dieser Meßposition nicht sehr glücklich war: Sie liegt innerhalb eines steilen räumlichen Gradienten, der innerhalb weniger Millimeter von Sauerstoffsättigung (unmittelbar an der Flüssigkeitsoberfläche) auf wenige Prozent dieses Wertes abfällt. Da der Flüssigkeitsspiegel beim Rühren außerdem in ständiger Auf- und Abbewegung ist, ist es unmöglich, die Meßposition und eine (ausgewählte) Berechnungstützstelle genau an demselben Ort (bezüglich Rührergeometrie *und* Flüssigkeitsoberfläche) anzuordnen.

Sauerstoffaufnahme Abbildung 7.6 zeigt abschließend, in relativen Einheiten, die räumliche Verteilung der lokalen Sauerstoffaufnahme, mit der die Mikroorganismen in der Simulation den Sauerstoff aufnehmen und verbrauchen. Hierbei wird, wie in Abschnitt 5.4.6 (Seite 116) beschrieben, eine Sauerstoffaufnahmekinetik nach MONOD angenommen, wobei die Konzentration halbmaximaler Aufnahme 0,5% Luftsättigung entspricht (Abschnitt 7.1.4, auf Seite 147). Man sieht deutlich, wie in weiten Teilen des Reaktors erheblicher Sauerstoffmangel zum Erliegen der Sauerstoffaufnahme (und des aeroben Stoffwechsels) führt.

7.2.3.2 Blasenbegasung

Nachdem die Simulation (und die verwendeten Parameter) für die Oberflächenbegasung validiert waren, wurde die Simulation um die Blasenbegasung und ihre Auswirkungen erweitert. Gleichzeitig wurde die Sauerstoffaufnahme der simulierten Bakteriensuspension entsprechend den Meßergebnissen aus der Fermentation erhöht, um wieder genau den experimentell untersuchten Prozeßzustand zu simulieren.

Abbildung 7.7 (Seite 156) zeigt das vorausgesagte Profil für den gelösten Sauerstoff. Der Wertebereich für die dargestellten Konzentrationen ist identisch mit dem in Abbildung 7.5 für die reine Oberflächenbegasung.

Aus der Simulation ergeben sich Konzentrationswerte an den vier Meßpositionen, die in Tabelle 7.1 (Seite 152) in der rechten Spalte aufgeführt sind. Die gemessenen Vergleichswerte stehen in Tabelle 6.6 auf Seite 140.

Die Simulation gibt korrekt wieder, daß die Sauerstoffkonzentration am Boden des Reaktors jetzt *trotz* der Blasenbegasung *geringer* ist als im Fall reiner Oberflächenbegasung. Das liegt daran, daß im Falle der Blasenbegasung (auch im Experiment) die spezifische Sauerstoffverbrauchsrate erheblich höher war.

Meßposition 1. Die *gemessene* Gelöstsauerstoffkonzentration achsnah an der freien Flüssigkeitsoberfläche (Meßposition 1) ist aber wiederum viel höher als in der Simulation. Hier gilt zunächst wieder, wie oben festgestellt, daß diese Meßposition nicht sehr glücklich gewählt war, weil sie in einem steilen räumlichen Gradienten liegt.

Weiterhin ist denkbar, daß sich (in der Realität) unter der freien Flüssigkeitsoberfläche besonders viele Gasblasen gesammelt haben. Durch die Substanzen, die die Blasenkoaleszenz behindern (Salze, Tenside), ist vermutlich auch die schlußendliche Verschmelzung von Blasen mit der freien Flüssigkeitsoberfläche behindert bzw. verzögert. Dieser Effekt wird in der Simulation nicht berücksichtigt.

Meßpositionen 3 & 4. Die Differenz der vorausgesagten Sauerstoffkonzentrationen an den Meßpositionen 3 und 4 ist deutlich geringer als im Experiment; dort ist der Wert der oberen Meßstelle (3) um eine größere Differenz höher (gegenüber der unteren Meßstelle [4]) als in der Simulation.

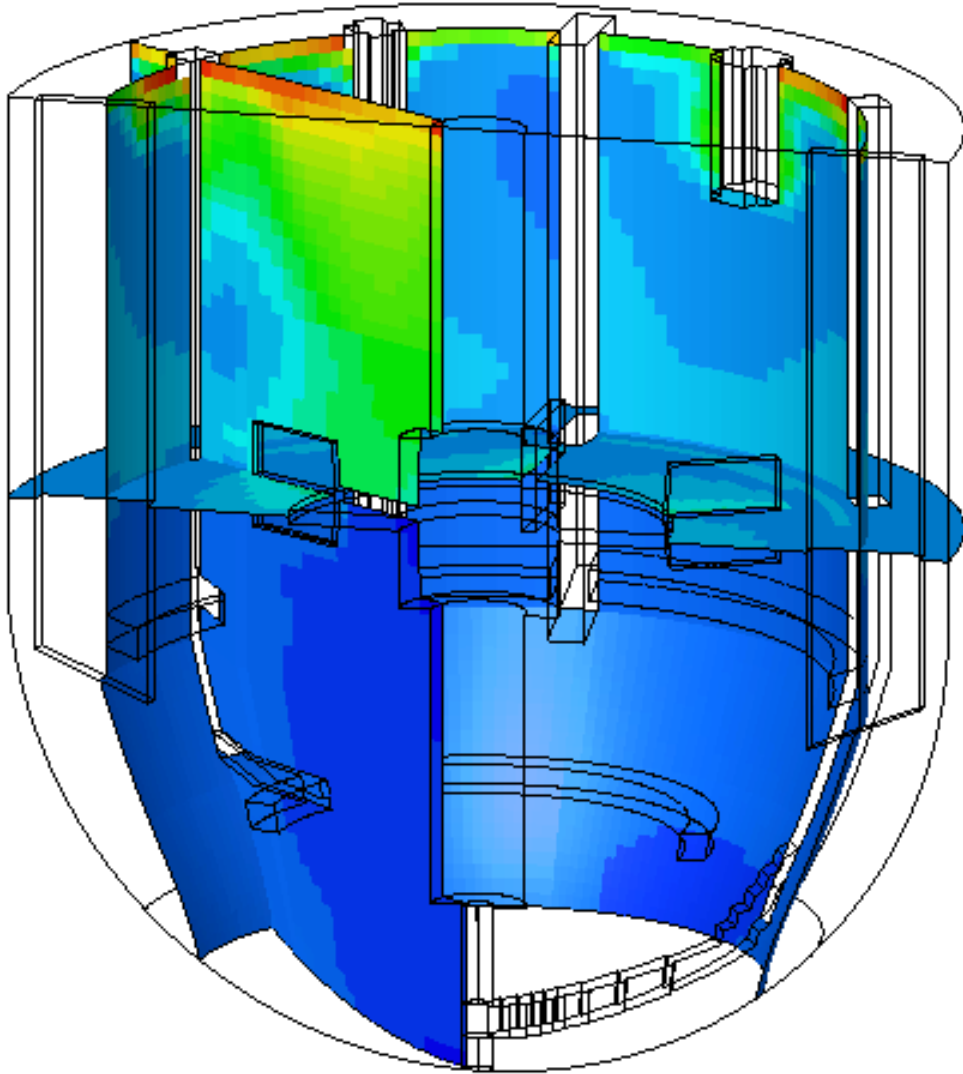


Abbildung 7.6: Das vorausgesagte (räumliche) Profil für die (relative) **Sauerstoffaufnahme**rate, das von der Simulation für den Fall **reiner Oberflächenbegasung** vorausgesagt wurde. (Abbildung 6.8 auf Seite 138 veranschaulicht die Lage der dargestellten Farbflächen im Reaktor.) Die Farbskala entspricht genau derjenigen in Abbildung E.1 (Seite 209); die gezeigten Werte liegen hier zwischen $0 \frac{\mu\text{g}}{\text{l}\cdot\text{s}}$ und $140 \frac{\mu\text{g}}{\text{l}\cdot\text{s}}$. Die mittlere Sauerstoffübertragungs- und -verbrauchsrate beträgt $18 \frac{\mu\text{g}}{\text{l}\cdot\text{s}}$.

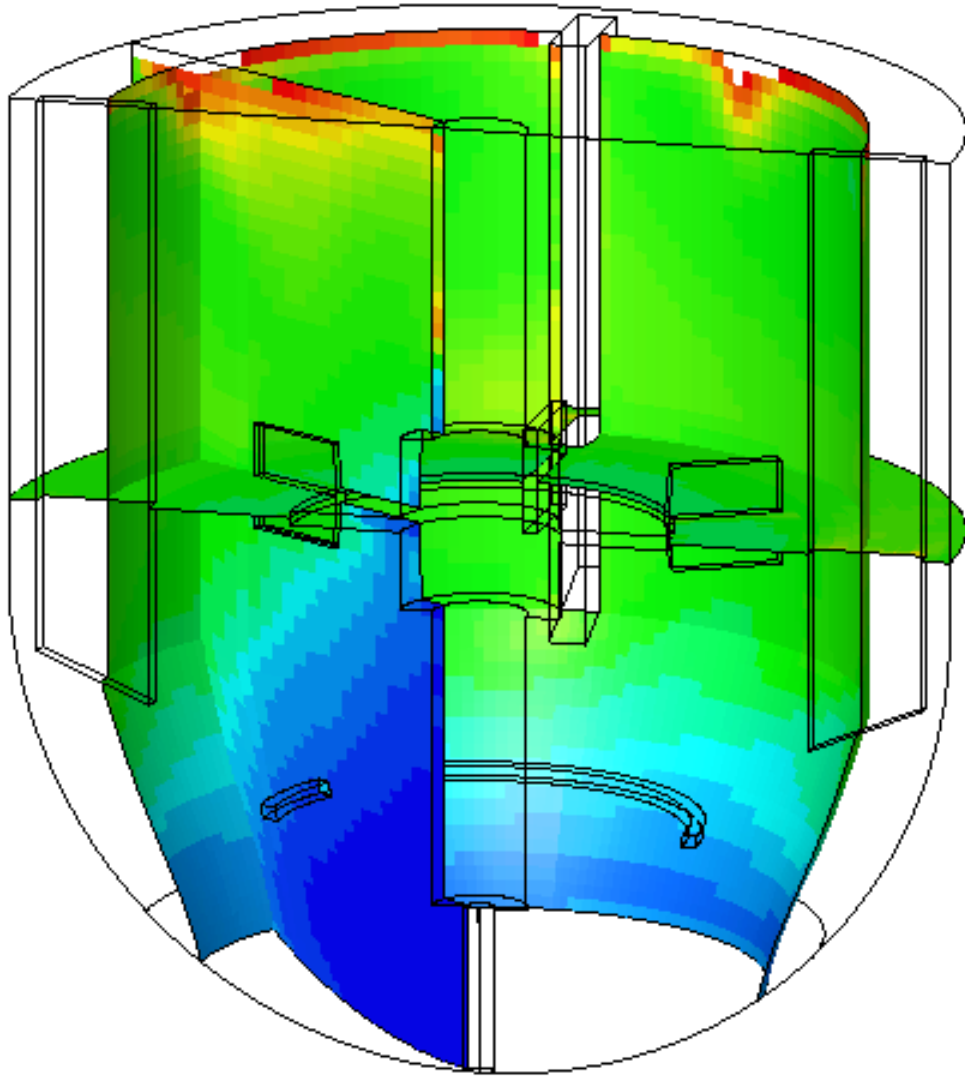


Abbildung 7.7: Das **Sauerstoffkonzentrationsprofil** in der Flüssigkeit, das von der Simulation für den Fall voller **Oberflächen- und Blasenbegasung** vorausgesagt wurde. (Abbildung 6.8 auf Seite 138 veranschaulicht die Lage der dargestellten Farbflächen im Reaktor.) Die Farbskala entspricht derjenigen in Abbildung E.1 (Seite 209); die gezeigten Werte liegen hier zwischen 0% LS und 1,5% LS (Luftsättigung). (Die mittlere Sauerstoffübertragungs- und -verbrauchsrate beträgt $114 \frac{\mu\text{g}}{\text{l}\cdot\text{s}}$.)

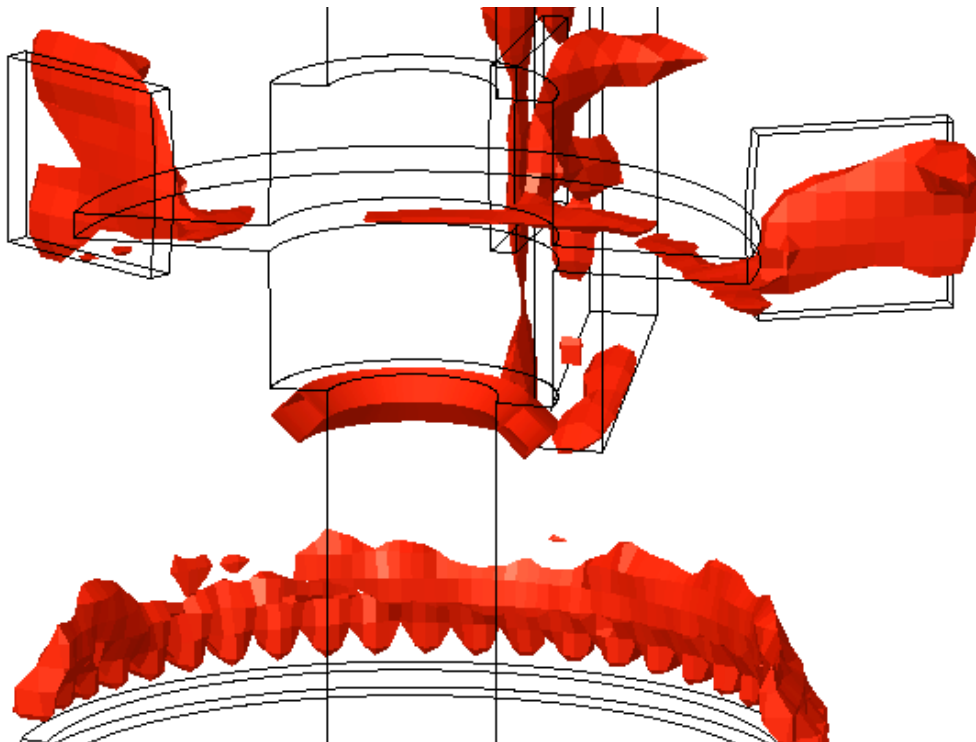


Abbildung 7.8: Räumliche Darstellung aller derjenigen Orte, an denen der lokale Gasvolumenanteil den Wert $\varepsilon_g = 3 \cdot \overline{\varepsilon_g} = 3 \cdot 2,26\% = 6,78\%$ überschreitet. Diskussion im Text (Abschnitt 7.2.3.3).

Die Strömungssimulation vernachlässigt den Einfluß der aufsteigenden Gasblasen auf die Strömung der Flüssigkeit (**entkoppelte** Simulation nach EULER/LAGRANGE). In der Realität geben die aufsteigenden Blasen der radialen Strömung, die vom Rührer kommt, eine aufwärtsgerichtete Komponente. Das wiederum gibt den aufsteigenden Blasen eine höhere Absolutgeschwindigkeit in vertikaler Richtung, so daß bei der Aufspaltung der radialen Strömung im Rührerauswurf ein größerer Anteil der Luftblasen den aufwärts gerichteten Weg einschlägt.

Da die Flüssigkeitsströmung (zur korrekten Vorhersage der Turbulenzdaten an dem ungewöhnlich großen Rührer) instationär berechnet werden sollte, war die *Entkopplung* eine unumgängliche Einschränkung.⁸ In Zukunft wird aber die voll instationäre Strömungssimulation nach EULER/LAGRANGE möglich sein; hier liegt also ein großes Potential zur Verbesserung des entwickelten Modelles.

7.2.3.3 Gasverteilung

Abbildung 7.8 zeigt, als dreidimensionale Freiformoberflächen, wo die höchsten lokalen Gasvolumenanteile auftreten. Die dargestellten Oberflächen verbinden alle Punkte, an denen der lokale Gasvolumenanteil dreimal so hoch ist wie der *mittlere* Gasvolumenanteil in der Simulation. Letzterer hat den Wert $\overline{\varepsilon_g} = 2,26\%$.

Es ist deutlich zu sehen, daß hohe Gasvolumenanteile an folgende Stellen auftreten:

⁸Auch eine pseudostationäre Strömungsberechnung mit voller (bidirektionaler) Kopplung zwischen den Phasen hätte erhebliche Eingriffe in das Simulationsprogramm erfordert. Diese Notwendigkeit ergibt sich aus der (ausschließlich) in Rührernähe *relativen* Formulierung der Blastrajektorien.

- Direkt über dem Begaserring;
- unter der Nabe des Rührers;
- unter dem Strömungsbrecher;
- stellenweise unter der Rührerscheibe;
- im Strömungsschatten (Unterdruckseite) *hinter* den Rührerblättern.

Der letzte Punkt verdient hier besondere Beachtung. An der genannten Stelle bilden sich nämlich in gerührten, begasten Systemen bekanntermaßen sehr leicht größere Gaskavitäten aus. Sie bewegen sich, ortsfest bezüglich des Rührers, mit diesem und üben erheblichen Einfluß auf die Strömung aus, die vom Rührer produziert wird.

Die lokale Häufung von Gasblasen hinter den Rührerblättern hat zwei Ursachen:

1. Die Strömung verläuft in Rührernähe so, daß viele Blasen den radialen Weg entlang der Unterdruckseite des Rührerblattes nehmen [307].
2. Die Strömung hinter dem Rührerblatt ist so geartet, daß viele Blasen hier nahezu zum Stillstand kommen. Während ihrer langen Verweilzeit können sie leicht mit anderen Blasen in Kontakt kommen, die in ihre Nähe transportiert werden. Bei hinreichend langer, ungestörter Kontaktzeit können sie – trotz Koaleszenzhemmung – miteinander koaleszieren, so daß es zur Ausbildung der erwähnten Gaskavitäten kommt.

Die Untersuchung zahlreicher Blasentrajektorien in der Simulation zeigt, daß diese beiden Phänomene genau vom Modell beschrieben werden: Viele Trajektorien gehen durch den Strömungsschatten hinter den Rührerblättern, und sie haben dabei im Bereich hinter dem Rührerblatt sehr geringe (relative) Geschwindigkeiten. Das EULER/LAGRANGE-Modell gibt also – mit den hier eingeführten Modifikationen (s. Abschnitt 5.3, auf Seite 99) – ein realistisches Bild von der detaillierten Gas-Flüssigkeits-Strömung am Rührorgan.

7.2.4 Zusammenfassung

Dieser Abschnitt zeigt, wie das aufgestellte numerische Modell an Hand von ausgewählten Simulationsergebnissen mit Literaturwerten und experimentellen Daten validiert wurde. Neben den ermittelten Modellparametern (vgl. die Zusammenfassung in Abschnitt 7.1.5, auf Seite 147) stehen Blasengrößen- und -verweilzeitverteilungen aus den Simulationen zur Verfügung. Der Vergleich mit Literaturwerten beweist in beiden Fällen eine große Realitätsnähe der Modellvoraussagen (Abschnitte 7.2.2.1 [S. 148] und 7.2.2.3 [S. 149]).

Weiterhin wurden vorausgesagte Profile der Gelöstsauerstoffkonzentration mit lokalen Meßwerten aus eigenen Messungen verglichen. Für den Fall reiner Oberflächenbegasung wurde gute Übereinstimmung gefunden. Bei zusätzlicher Blasenbegasung zeigen sich gewisse quantitative Fehler in den (qualitativ korrekten) Simulationsergebnissen. Diese sind mit großer Wahrscheinlichkeit darauf zurückzuführen, daß das Modell die Auswirkungen der dispersen Gasphasenströmung auf das Strömungsfeld der Flüssigkeitsströmung vernachlässigt. Dies läßt sich in Zukunft mit der mittlerweile verfügbaren Simulationssoftware beheben.⁹

⁹FLUENT ist inzwischen in der Version 5.5 auf dem Markt, die neben der Verwendung unstrukturierter Netze und unzähligen anderen Optionen auch eine voll instationäre Trajektorienberechnung in einer instationären Strömungssimulation erlaubt.

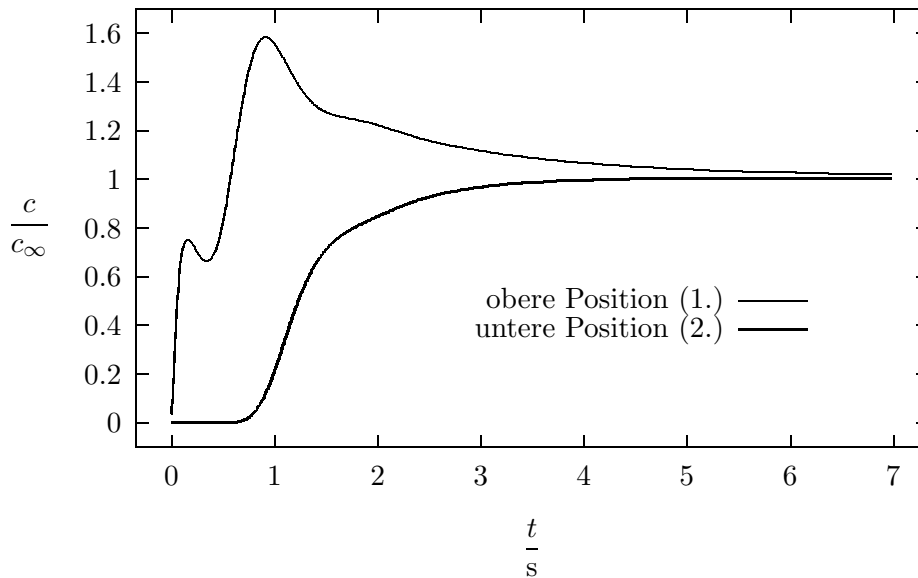


Abbildung 7.9: Mischzeitbestimmung in der numerischen Simulation für den verwendeten Versuchsreaktor, bei einer Rührerdrehzahl von 180 Upm. Nach einer „numerischen“ Spurstoffzugabe wurde an den folgenden zwei Positionen der Konzentrationsverlauf über der Zeit aufgetragen: (1.) 4 cm unter der Oberfläche, nahe der Reaktorwand (zwischen zwei Schikanen) und (2.) kurz unterhalb einer der Schikanen (Strömungsbrecher).

7.3 Modellvoraussagen

Im folgenden soll gezeigt werden, welchen weiteren Nutzen man aus der Anwendung der numerischen Simulation mit dem in dieser Arbeit entwickelten Modell ziehen kann.

Zuerst wird in verschiedenen Beispielen demonstriert, welche Voraussagen das Modell über Prozesse in bisher nicht existierenden (und nicht untersuchten) Reaktoren treffen kann. Dazu wurden einige Variationsrechnungen durchgeführt, die jeweils von den experimentell untersuchten Fermentationszuständen ausgehen. Die beispielhaft dargestellten Simulationsergebnisse werden im Sinne einer weiteren Validierung einigen Überprüfungen unterzogen.

Außerdem werden (in Abschnitt 7.4, auf Seite 171) einige weitergehende Modellaussagen vorgestellt, die es ermöglichen, aus der Simulation genaue Angaben darüber abzuleiten, welchen Umgebungseinflüssen ein Biokatalysator (Mikroorganismus) in einem simulierten Reaktor (existierend oder noch hypothetisch) ausgesetzt ist.

7.3.1 Mischzeiten

Das hier entwickelte Modell soll als Vorhersagewerkzeug bei der Maßstabsvergrößerung verstanden werden. Dabei ermöglicht es insbesondere die Vorhersage der Inhomogenitäten in (begasten) Rührkesselreaktoren.

Eine klassische Methode, die Homogenität in Rührkesselreaktoren zu quantifizieren, ist die Messung von Mischzeiten. Dies wurde deswegen auch mit der numerischen Simulation nachempfunden. Die stoßartige Zugabe eines Spurstoffes wurde dargestellt, indem in einem kleinen Teilvolumen eine hohe Konzentration eines Spurstoffes vorgegeben wurde; das restliche Volumen enthielt den Spurstoff nicht. Von diesem Zustand ausgehend wurden sieben Sekunden Echtzeit simuliert.

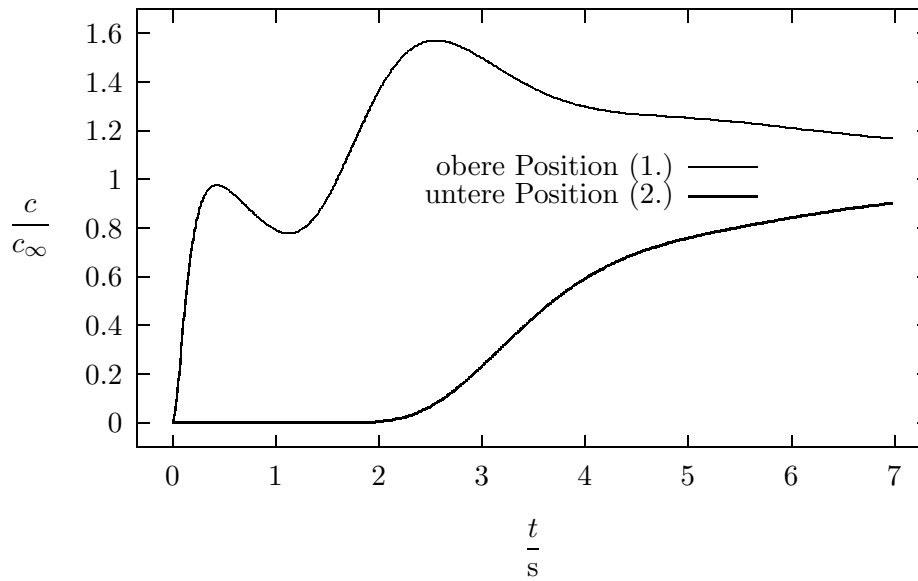


Abbildung 7.10: Mischzeitbestimmung in der numerischen Simulation für den auf 100-faches Volumen maßstabsvergrößerten Reaktor mit einer Rührerdrehzahl von 64,7 Upm (konstanter spezifischer Leistungseintrag). Nach einer „numerischen“ Spurstoffzugabe wurde an den folgenden zwei Positionen der Konzentrationsverlauf über der Zeit aufgetragen: (1.) ca. 18 cm unter der Oberfläche, nahe der Reaktorwand (zwischen zwei Schikanen) und (2.) kurz unterhalb einer der Schikanen (Strömungsbrecher).

Die beschriebene Simulation wurde einmal für den experimentell untersuchten Reaktor bei der verwendeten Drehzahl von 180 Upm ausgeführt, und einmal für einen (hypothetischen) 100-fach vergrößerten Reaktor bei einer Drehzahl von 64,7 Upm (konstanter spezifischer Leistungseintrag). Es wurde jeweils an zwei Positionen der Verlauf der lokalen Konzentration des Spurstoffes über der Zeit verfolgt; die Ergebnisse sind in den Abbildungen 7.9 (Originalreaktor) und 7.10 (100-faches Volumen; auf Seite 160) graphisch dargestellt.

Man erkennt unmittelbar, daß der Vermischungsvorgang im größeren Reaktor erheblich langsamer vonstatten geht; die Verläufe haben große Ähnlichkeit miteinander, wobei derjenige im *großen Reaktor* ungefähr um den Faktor 2,8 gegenüber dem anderen *zeitlich gedehnt* ist. Dementsprechend werden für den großen Reaktor um den Faktor 2,8 größere Mischzeiten vorausgesagt. An den Oszillationen der überschwingenden Kurve läßt sich auch eine ungefähre Zirkulationszeit ablesen; diese ist ebenfalls im größeren Reaktor um den genannten Faktor größer.

Basierend auf der KOLMOGOROVschen Theorie isotroper Turbulenz wurde in experimentell bestätigten Korrelationen festgehalten, daß die Mischzeit in geometrisch ähnlichen Systemen umgekehrt proportional zur Rührerdrehzahl ist [150]:

$$t_m \sim n^{-1} \quad (7.3 - 7)$$

Das Verhältnis der hier verwendeten Rührerdrehzahlen (180 Upm und 64,7 Upm) beträgt 2,78 – die Simulationsergebnisse bestätigen also sehr genau die anerkannten Literaturkorrelationen!

Der Vorteil der numerischen Simulation gegenüber Korrelationen besteht nun darin, daß die Einschränkung „in geometrisch ähnlichen Systemen“ fallengelassen werden kann – mit der numerischen Strömungssimulation und direkter geometrischer Rührersimulation können belie-

Tabelle 7.2: Voraussagen des Modells für die Drehzahlvariation des Rührers. Aufgelistet sind die volumengemittelte Konzentration $\overline{p_{O_2}}$ an gelöstem Sauerstoff, der mittlere Gasvolumenanteil $\overline{\varepsilon_g}$ und die normierte Sauerstoffübertragungsrate (OTR) – näheres dazu im Text (Abschnitt 7.3.2.1).

$\frac{n}{\text{Upm}}$	$\frac{\overline{p_{O_2}}}{\% \text{LS}}^a$	$\frac{\overline{\varepsilon_g}}{\%}^b$	$\frac{\text{OTR}}{s^{-1}}$	$\frac{\text{OTR}_{\text{Oblf}}}{s^{-1}}$ (s. Text)
100	0,094	0,87	0,00375	0,00199
180	0,413	2,26	0,0163	0,00267
324	0,737	10,1	0,0293	0,00356

^aLS = Luftsättigung

^bVolumenanteil, in Prozent

*big*e Rührer- und Behältergeometrien mit derselben gerade bewiesenen Genauigkeit behandelt werden.

7.3.2 Drehzahlvariation

Die nächste rechnerische Variation bestand darin, daß die Drehzahl – ausgehend vom experimentell untersuchten Reaktor und Betriebszustand – jeweils um den Faktor 1,8 erniedrigt und erhöht wurde. Die Geometrie des Reaktors wurde dabei vollständig beibehalten. Es wurden jeweils Zustände mit reiner Oberflächenbegasung und mit vollständiger Oberflächen- und Blasenbegasung untersucht; jedesmal wurden getrennt die Sauerstoffübertragungsraten (OTR) für die freie Oberfläche und das Gesamtsystem (Oberfläche und disperse Gasblasen) ermittelt.

7.3.2.1 Ergebnisse

Tabelle 7.2 gibt für jede der drei Drehzahlen die volumengemittelte Sauerstoffkonzentration $\overline{p_{O_2}}$, den mittleren Gasvolumenanteil $\overline{\varepsilon_g}$ und die volumengemittelte Sauerstoffübertragungsrate OTR an. Letztere ist jeweils identisch mit der (ebenfalls volumengemittelten) Sauerstoffaufnahme rate OUR.¹⁰ Sie wird hier in der Einheit s^{-1} angegeben, weil sie auf die Sättigungskonzentration für Gelöstsauerstoff ($7 \frac{\text{mg}}{\text{l}}$) bezogen (normiert) wird.¹¹ (Multipliziert man OTR (oder OUR) mit diesem Wert ($7 \frac{\text{mg}}{\text{l}}$), erhält man die volumetrische Sauerstoffübertragungs- und -verbrauchsrate in der Einheit $\frac{\text{mg}}{\text{l} \cdot \text{s}}$.) Zusätzlich ist diejenige OTR angegeben, die durch die freie Oberfläche vermittelt wird.

Auswertung der Zahlenwerte. Die aufgelisteten Zahlenwerte sind in Abbildung 7.11 graphisch aufgetragen. Auf der Abszisse ist die dritte Potenz der Rührerdrehzahl aufgetragen, weil dieser Wert direkt proportional zum Leistungseintrag des Rührers ist. Qualitativ ist zu erkennen, daß die Sauerstoffübertragungsrate OTR ($\sim \beta_l a$, s. o.) und der relative Gasvolumenanteil $\overline{\varepsilon_g}$ mit der Rührerdrehzahl steigen. Dies liegt im wesentlichen daran, daß der schneller rotierende Rührer mit mehr Turbulenz und Scherkräften die Blasen in kleinere Fragmente zerteilt, die dann eine

¹⁰Globales Gleichgewicht zwischen Sauerstoffeintrag und -verbrauch; die Konzentration bleibt jeweils zeitlich konstant. Lokal treten Unterschiede zwischen OTR und OUR auf, die aber vom Stofftransport niedergehalten werden.

¹¹Wenn die Gelöstsauerstoffkonzentration im Reaktor nahe Null ist, so sind der volumetrische Stoffaustauschkoefizient $\beta_l a$ und diese normierte Sauerstoffübertragungsrate OTR näherungsweise identisch [vgl. Gleichung 2.3 - 12, auf Seite 22]. Die in der Tabelle angegebenen Wert (in s^{-1}) können also näherungsweise als $\beta_l a$ -Werte angesehen werden.

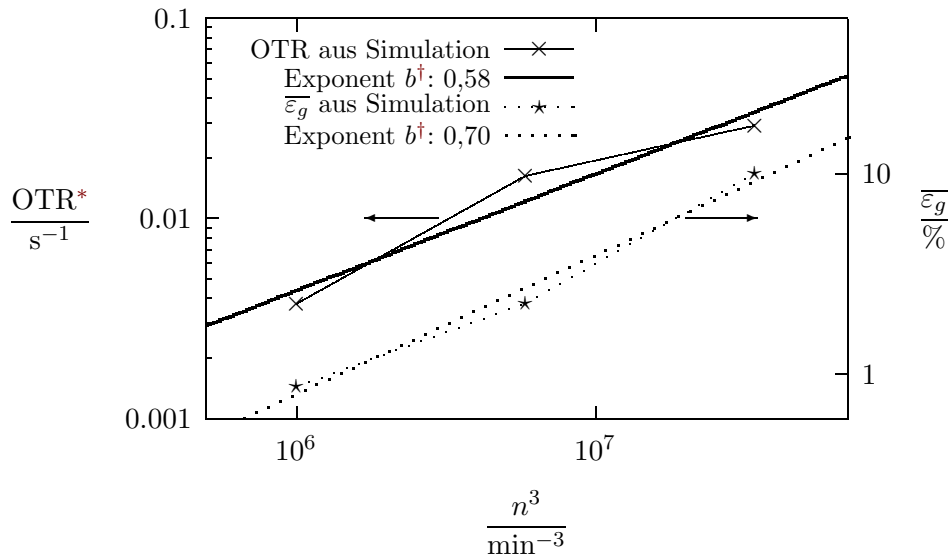


Abbildung 7.11: Die Abhängigkeiten von Gasvolumenanteil $\overline{\varepsilon}_g$ und Sauerstoffübertragungsrate $OTR \sim \beta_1 a$ von der Drehzahl, wie sie von der Simulation vorausgesagt werden. Die dargestellten Zahlenwerte sind in Tabelle 7.2 aufgelistet. (Einzelheiten und Diskussion in Abschnitt 7.3.2.2 und 7.3.2.3.)

*Sauerstoffübertragungsrate, normiert auf die Löslichkeit

†Vgl. Gleichung 7.3 - 8, auf Seite 165

geringere Aufstiegsgeschwindigkeit haben und deswegen erheblich länger im Flüssigkeitsvolumen zirkulieren, bevor sie die freie Flüssigkeitsoberfläche erreichen.

Abbildung 7.12 zeigt das vorausgesagte (stationäre) Konzentrationsprofil für Gelöstsauerstoff bei der reduzierten Drehzahl von 100 Upm. Abbildung 7.13 auf Seite 164 zeigt das (stationäre) Konzentrationsprofil für die erhöhte Drehzahl von 324 Upm. Die Darstellungen sind jeweils mit Abbildung 7.7 (Seite 156) zu vergleichen. (Dabei sind die teilweise unterschiedlichen Wertebereiche für p_{O_2} zu beachten!)

Auswertung der Konzentrationsprofile. In den drei Darstellungen sind, zusätzlich zu den bereits genannten Beobachtungen an Hand der globalen Zahlen, folgende Trends zu sehen:

- Bei geringer Drehzahl zirkulieren immer weniger Blasen im unteren Teil des Reaktors; Gasvolumenanteil und Gelöstsauerstoffkonzentration entwickeln ausgeprägte vertikale Gradienten.
- Bei hoher Drehzahl werden die räumlichen Verteilungen erheblich homogener, die Gradienten schrumpfen zusammen.

7.3.2.2 Diskussion

Bei allen simulierten Drehzahlen lag die mittlere Gelöstsauerstoffkonzentration $\overline{p_{O_2}}$ unter 1% LS (Luftsättigung). Gemäß der Einführung der (auf die Löslichkeit) normierten OTR im vorigen Abschnitt (s. dort, Fußnote 11 [S. 161]) sind daher die (normierte) Sauerstoffübertragungsrate

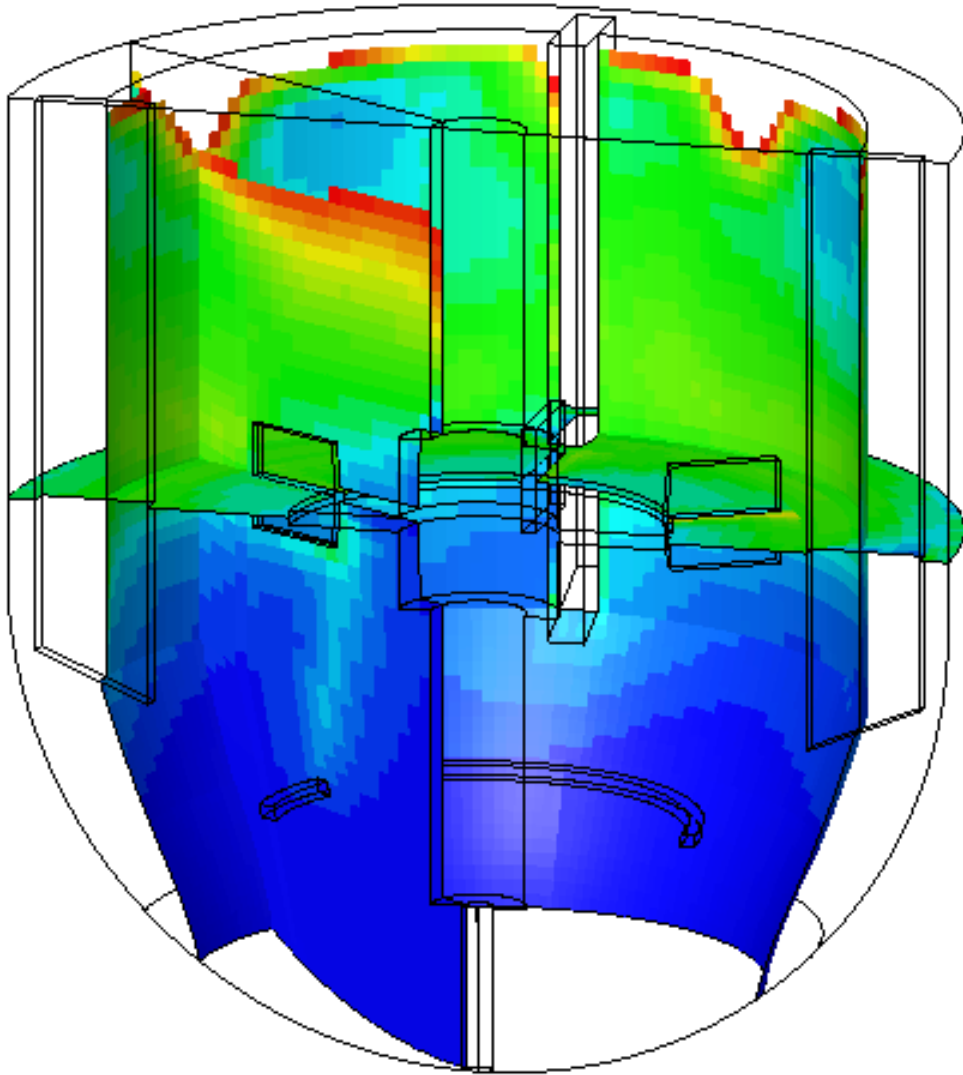


Abbildung 7.12: Das Konzentrationsprofil für Gelöstsauerstoff, wie es vorausgesagt wird, wenn, ausgehend von der dargestellten Simulation in Abbildung 7.7 (Seite 156), die Rührerdrehzahl von 180 Upm auf 100 Upm gesenkt wird. (Abbildung 6.8 auf Seite 138 veranschaulicht die Lage der dargestellten Farbflächen im Reaktor.) Die Farbskala entspricht derjenigen in Abbildung E.1 (Seite 209); die gezeigten Werte liegen hier zwischen $p_{O_2} = 0\%$ LS (Luftsättigung) und $p_{O_2} = 0,3\%$ LS.

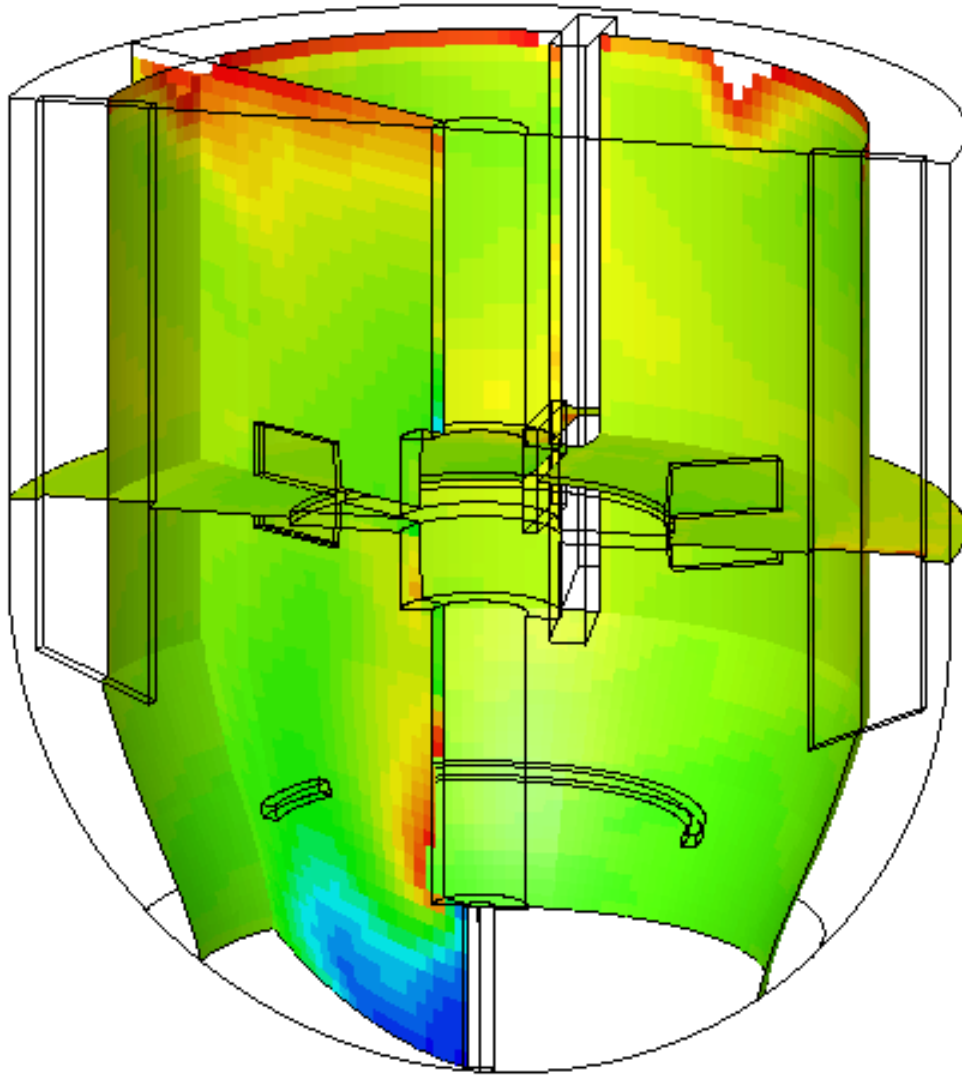


Abbildung 7.13: Das Konzentrationsprofil für Gelöstsauerstoff, wie es vorausgesagt wird, wenn, ausgehend von der dargestellten Simulation in Abbildung 7.7 (Seite 156), die Rührerdrehzahl von 180 Upm auf 324 Upm erhöht wird. (Abbildung 6.8 auf Seite 138 veranschaulicht die Lage der dargestellten Farbflächen im Reaktor.) Die Farbskala entspricht derjenigen in Abbildung E.1 (Seite 209); die gezeigten Werte liegen hier zwischen $p_{O_2} = 0\%$ LS (Luftsättigung) und $p_{O_2} = 1,5\%$ LS.

OTR und der volumetrische Stoffübergangskoeffizient β_{la} näherungsweise identisch. Die OTR muß also hier den Gesetzen für den β_{la} folgen.

In voll turbulentem Betrieb des Rührers ist der Leistungseintrag des Rührers proportional zur dritten Potenz der Drehzahl ($\frac{P}{V} \sim n^3$; s. Gleichung 2.1 - 2, auf Seite 13). In Abbildung 7.11 (Seite 162) ist deswegen die jeweils gemessene OTR (proportional zu β_{la}) über $n^3 \sim \frac{P}{V}$ aufgetragen. In der Literatur wird die Abhängigkeit des volumetrischen Stoffaustauschkoeffizienten β_{la} von der Rührerleistung folgendermaßen formuliert:

$$\beta_{la} \sim \left(\frac{P}{V}\right)^b \quad (7.3 - 8)$$

Der Exponent b hat hierbei in koaleszenzhemmenden Medien (Salzlösungen) Werte nahe **0,7** [121, 277]; für reines Wasser wurden kleinere Werte (0,4) gefunden. Die Ausgleichsgerade für die Simulationsergebnisse hat eine Steigung von **0,58** (vgl. Abbildung 7.11, auf Seite 162).

Das hier entwickelte Modell kennt keine Koaleszenz; der gefundene Exponent sollte deswegen, entsprechend den Literaturdaten, näher an 0,7 liegen. Hierauf wird im folgenden Abschnitt noch einmal eingegangen. (Es ist außerdem unklar, wie exakt die Literaturkorrelationen den verwendeten Reaktor [mit dem extrem großen Rührer] im untersuchten Drehzahlbereich tatsächlich beschreiben können.)

7.3.2.3 Freie Oberfläche

In Abbildung 7.11 (Seite 162) ist zusätzlich der mittlere Gasvolumenanteil $\overline{\varepsilon}_g$ aufgetragen. Auch hier ist eine Ausgleichsgerade angepaßt worden, wobei sich für die Steigung der Wert 0,70 ergab. Die verfügbaren Literaturwerte für diesen Exponenten liegen verstreut zwischen 0,2 und 1,1 [310, 30, 325], weshalb sich ein genauerer Vergleich erübrigt.

Es fällt aber auf, daß die Steigung für den (relativen) Gasvolumenanteil $\overline{\varepsilon}_g$ unerwarteter Weise *höher* ist als diejenige für den (volumetrischen) Stoffaustauschkoeffizienten β_{la} . Wenn der Gasvolumenanteil ε_g (und also, bei gleichbleibender Begasungsrate \dot{V}_g , die Gasverweilzeit τ_g) ansteigt, dann sollte, wegen der zusätzlichen (und ursächlichen) Verkleinerung der Blasen, der β_{la} -Wert daran gemessen *überproportional* steigen. Die Simulation sagt hier das Gegenteil voraus. Mehrere Erklärungen bieten sich für diese Diskrepanz an:

1. Der zunehmende Gasvolumenanteil muß aus immer kleineren Gasblasen bestehen. Möglicherweise zirkulieren diese wesentlich länger im Reaktor, als an Zeit nötig ist, damit sie einen wesentlichen Anteil ihres Sauerstoffs an die Flüssigkeit abgeben. Es träte also eine starke Sauerstoffverarmung der zirkulierenden, dispersen Gasphase auf, so daß der erhöhte Gasvolumenanteil nicht die erwartete Steigerung des β_{la} -Wertes bewirkte. – Die Simulation bei 324 Upm sagt für den Abgasstrom des Reaktors einen Sauerstoffanteil von über 17% voraus; dieser Erklärungsansatz kann also die erhebliche Diskrepanz nicht begründen.
2. Bei kleinen Rührerdrehzahlen und damit auch kleinen Gasvolumenanteilen findet ein bedeutender (relativer) Anteil des Sauerstoffeintrages nicht an den Blasen, sondern an der freien Oberfläche statt. Dies zeigen eindeutig die Zahlen in der letzten Spalte in Tabelle 7.2 (Seite 161). Bei der kleinsten Drehzahl kommt mehr als die Hälfte des eingetragenen Sauerstoffs direkt durch die freie Oberfläche; bei der höchsten Drehzahl beträgt dieser Anteil nur noch 12%. Somit ist klar, warum der Sauerstoffeintrag nur deutlich unterproportional mit dem Gasvolumenanteil steigt.

Unternimmt man die gleiche Auswertung der Daten und Anpassung einer Ausgleichsgerade unter Abzug der Stoffaustauschanteile durch die freie Oberfläche, so ergibt sich eine Steigung

der Ausgleichsgeraden von **0,76**. Hier zeigt sich jetzt also der erwartete überproportionale Anstieg des Stoffaustausches (OTR) mit dem Gasvolumenanteil ($\overline{\varepsilon}_g$).

7.3.3 Maßstabsvergrößerung

Zur weiteren Charakterisierung des Modells wurde eine Maßstabsvergrößerung des untersuchten Reaktors auf das einhundertfache Volumen simuliert.

7.3.3.1 Kriterien

Für die Maßstabsvergrößerung wurden verschiedene Kriterien verwendet, um Drehzahl und Gasvolumenstrom auszuwählen:

- Drehzahl:

1. **Leistungseintrag.** Eine Variante ist, den Leistungseintrag des Rührers konstant zu halten. Wenn die Definitionsgleichung für die NEWTONzahl (Gleichung 2.1 - 2, auf Seite 13) durch die Proportionalität $V \sim d^3$ dividiert wird, ergibt sich:

$$\frac{P}{V} \sim d^2 \cdot n^3 \quad (7.3 - 9)$$

Demnach ist der Ausdruck $d^2 \cdot n^3$ bei der Maßstabsvergrößerung konstant zu halten [226]; das ergibt eine neue Drehzahl von knapp 65 Upm.

2. **Spitzengeschwindigkeit** Eine andere, gebräuchliche Variante der Maßstabsvergrößerung ist, die Rührerspitzengeschwindigkeit konstant zu halten. Diese ergibt sich unmittelbar aus dem Produkt $n \cdot d$; wenn dieses konstant zu halten ist, ergibt sich eine neue Drehzahl von knapp 39 Upm.

- Gasvolumenstrom:

3. **Volumetrische Begasungsrate** Ein alte, klassische Regel für die Maßstabsvergrößerung ist, den Gasvolumenstrom linear mit dem Flüssigkeitsvolumen zu steigern. Die Gaszufuhr in den Reaktor je Liter Fermentationsbrühe bleibt konstant. Im vorliegenden Fall bedeutet dies eine Verhundertfachung des Gasstromes.
4. **Gasleerrohrgeschwindigkeit** Geht man vom Verhalten einer Blasensäule aus, so läßt die vorgenannte Methode bei der Maßstabsvergrößerung ein Anwachsen des integralen Gasgehaltes $\overline{\varepsilon}_g$ im Reaktor erwarten. Aus diesem Blickwinkel erscheint es wesentlich sinnvoller, den Gasvolumenstrom nur linear mit dem horizontalen Reaktorquerschnitt zu steigern, was einem Konstanthalten der Gasleerrohrgeschwindigkeit w_{g0} entspricht.

In den ausgeführten Variationsrechnungen wurden alle vier möglichen Kombinationen der vorgenannten Kriterienpaare für die Maßstabsvergrößerung untersucht. Sie sollen im nachfolgenden der Einfachheit halber mit vier römischen Zahlen bezeichnet werden:

- I. Kombination der Regeln **1** und **3** („ $\frac{P}{V} + \text{vvm}$ “);
- II. Kombination der Regeln **1** und **4** („ $\frac{P}{V} + w_{g0}$ “);
- III. Kombination der Regeln **2** und **3** („ $n \cdot d + \text{vvm}$ “);
- IV. Kombination der Regeln **2** und **4** („ $n \cdot d + w_{g0}$ “);

Tabelle 7.3: Voraussagen des Modells für die Maßstabsvergrößerung des untersuchten Reaktors und Prozesses. Es wurden die vier verschiedenen Kombinationen (**I** bis **IV**) der Kriterien für die Maßstabsvergrößerung verwendet, die auf Seite 166 erklärt sind. Aufgelistet sind die volumengemittelte Konzentration $\overline{p_{O_2}}$ an gelöstem Sauerstoff, der mittlere Gasvolumenanteil $\overline{\varepsilon_g}$ und die normierte Sauerstoffübertragungsrate (OTR; näheres dazu im Text in Abschnitt 7.3.3).

Regel	$\frac{\overline{p_{O_2}}}{\%LS}^a$	$\frac{\overline{\varepsilon_g}}{\%}^b$	$\frac{OTR}{s^{-1}}$
I ($\frac{P}{V} + vvm$)	1,11	8,58	0,0431
II ($\frac{P}{V} + w_{g0}$)	0,242	1,85	0,00965
III ($n \cdot d + vvm$)	0,281	4,78	0,0112
IV ($n \cdot d + w_{g0}$)	0,0644	1,03	0,00261

^aLS = Luftsättigung

^bVolumenanteil, in Prozent

7.3.3.2 Ergebnisse

Die Ergebnisse der vier Simulationsrechnungen sind (analog zu Tabelle 7.2 [S. 161]) in Tabelle 7.3 aufgelistet. Zum Vergleich kann jeweils die mittlere Zeile (für 180 Upm) in der erstgenannten Tabelle herangezogen werden; sie steht für den Fall, von dem ausgehend die Maßstabsvergrößerung durchgeführt wurde.

Die Simulationsergebnisse (Tabelle 7.3) sind in Abbildung 7.14 graphisch dargestellt. Es sind jeweils Säulen für die mittlere Gelöstsauerstoffkonzentration $\overline{p_{O_2}}$, den mittleren Gasvolumenanteil $\overline{\varepsilon_g}$ und die mittlere, auf die Löslichkeit normierte¹² Sauerstoffübertragungsrate OTR gezeichnet. Gruppe 0 steht für den Ausgangszustand (der untersuchte Reaktor bei 180 Upm); die anderen vier Säulengruppen stehen für die vier bezeichneten Varianten der Maßstabsvergrößerung (vgl. Abschnitt 7.3.3.1).

Aus der Darstellung gehen deutlich folgende Sachverhalte hervor:

1. Die Veränderung von $\overline{p_{O_2}}$ und OTR bei der Maßstabsvergrößerung (vom Ursprungszustand ausgehend) geht jeweils um genau denselben Faktor. Das liegt daran, daß die (apparante) Sauerstoffkonzentration halbmaximaler Verbrauchsrate für die Bakterien mit umgebender Diffusionsbarriere (Schleimkapsel) auf 0,5% Luftsättigung festgesetzt wurde. Dadurch liegen alle vorausgesagten Konzentrationen in einem Bereich, in dem noch ein (ungefähr) linearer Zusammenhang zwischen Konzentration und Aufnahmerate besteht.
2. Das Verhältnis aus dem integralen Gasvolumenanteil $\overline{\varepsilon_g}$ und den vorgenannten Größen ist in allen vergrößerten Varianten gegenüber dem Ausgangszustand zu Gunsten des Gasvolumenanteils verschoben. Das bedeutet bei der Maßstabsvergrößerung, daß für eine konstante Sauerstoffversorgung der Kultur in jedem Fall eine Steigerung des integralen Gasgehaltes notwendig wird.
3. Das vorgenannte Phänomen ist um so stärker ausgeprägt, je geringer in der maßstabsvergrößerten Variante die Drehzahl ist. Es ist zu fragen, bei welcher *scale-up*-Regel für die Rührerdrehzahl das Verhältnis zwischen Gasgehalt und Sauerstoffeintrag konstant bleibt.

¹²Vgl. den Text in Abschnitt 7.3.3 sowie Fußnote 11 auf Seite 161.

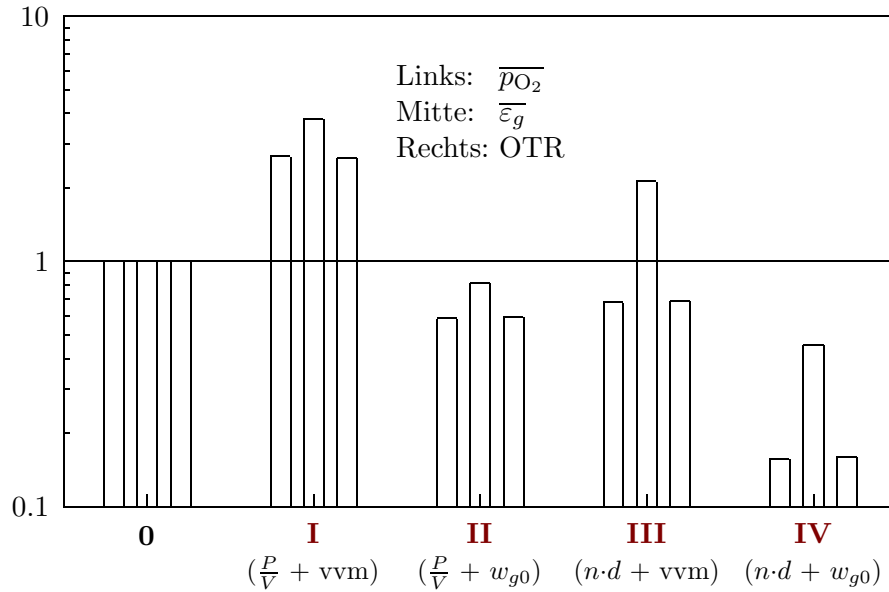


Abbildung 7.14: Die Vorhersagen, die das entwickelte Modell für die Maßstabsvergrößerung des untersuchten Prozeßzustandes auf 100-faches Volumen trifft. Gruppe **0** steht für den Ausgangszustand (der beschriebene Reaktor, bei 180 Upm); die anderen vier Gruppen stehen für die vier Kombinationen von Kriterien für die Maßstabsvergrößerung, die in Abschnitt 7.3.3.1 (Seite 166) angegeben sind. Alle Werte sind jeweils auf diejenigen des Ausgangszustandes bezogen.

In den untersuchten Fällen wurde die Drehzahl n linear mit $\frac{1}{d}$ (**III** und **IV**) bzw. $d^{-\frac{2}{3}}$ (**I** und **II**) erhöht; die Antwort könnte also bei ungefähr $n \sim \frac{1}{\sqrt{d}}$ liegen. Dies führt zu sehr hohen Drehzahlen und Leistungseinträgen; wegen der damit verbundenen Energiekosten wird man also vorziehen, die Begasungsrate zu steigern. Hierbei ist aber Vorsicht geboten, weil bei dieser Strategie der Abstand des geplanten Betriebszustandes zur Überflutungs-grenze des Rührers u.U. massiv verringert wird (vgl. den nächsten Punkt).

- Die Konstanzhaltung der Rührerspitzen-geschwindigkeit (**III** & **IV**) kann nur bedingt ein brauchbares Kriterium für die Maßstabsvergrößerung sein – sie erfordert eine erhebliche Steigerung des integralen Gasvolumenanteils, was bei vielen Rührertypen sicherlich schnell an die Belastungsgrenze für die Gasdispersion durch den Rührer führt. (Beim Überschreiten dieser Grenze setzt die sog. „Überflutung“ des Rührers ein, d.h. die vertikalen Auftriebskräfte des Gases überwiegen die [radiale] Pumpwirkung des Rührers, und die Zirkulation im Reaktor bricht zusammen.)
- Die Konstanzhaltung des spezifischen Rührerleistungseintrages¹³ (**I** & **II**) ist für die Maßstabsvergrößerung des (mikro-) aeroben Bioprozesses besser geeignet. Bei konstanter Gas-leerrohr-geschwindigkeit (**II**) wird aber nur das 0,6-fache des ursprünglichen volumenbezo-genen Stoffeintrages erreicht. Bei konstanter volumetrischer Begasungsrate wird hingegen das 2,6-fache erreicht (**I**); die ideale Regel zur Einstellung des Gasvolumenstromes in der Maßstabsvergrößerung liegt also zwischen diesen beiden Standpunkten.

¹³Vergleiche hierzu auch Abschnitt 7.3.4.

7.3.3.3 Freie Oberfläche

Die gefundenen und hier diskutierten Ergebnisse stehen mit großer Wahrscheinlichkeit unter dem Einfluß der Tatsache, daß der relative Anteil, den der Beitrag der freien Flüssigkeitsoberfläche zum Stoffaustausch ausmacht, stark von der absoluten Reaktorgröße abhängt (vgl. Abschnitt 7.3.2.3, auf Seite 165).

Um dies zu veranschaulichen, ist in Abbildung 7.15 das vorausgesagte räumliche Konzentrationsprofil für die Gelöstsauerstoffkonzentration im maßstabsvergrößerten Reaktor und Betriebszustand nach Regel II („ $\frac{P}{V} + w_{g0}$ “) wiedergegeben. In diesem Fall beträgt die (volumengewichtet) *gemittelte* Gelöstsauerstoffkonzentration etwa 60% des Ursprungszustandes. Verglichen mit Abbildung 7.7 (Seite 156) ist der Wertebereich der Farbskala nur halb so groß; um so mehr fallen die weniger hohen Konzentrationswerte in der Nähe der freien Oberfläche im maßstabsvergrößerten Reaktor auf.

Wendet man Regel I („ $\frac{P}{V} + vvm$ “) an, so verringert sich der Einfluß des Stoffaustauschs durch die freie Oberfläche noch weiter, weil die Regel eine stärkere Blasenbegasung fordert (Ergebnisse nicht abgebildet). Dasselbe gilt sinngemäß auch für Regel III („ $n \cdot d + vvm$ “), wo gegenüber dem letztgenannten Fall eine geringere Rührerdrehzahl zu einer weiter gesteigerten Bedeutung der Gasblasen für den Gesamtstoffaustausch führt. (Eine Betrachtung der Regel IV [„ $n \cdot d + w_{g0}$ “] erübrigt sich auf Grund ihrer früher demonstrierten Untauglichkeit.)

Alle hier gezogenen Schlüsse basieren auf Ergebnissen einer *Simulation*; dabei darf nicht außer Acht fallen, daß das Modell und die ausgeführten Simulationen nur näherungsweise die Realität repräsentieren können. Dies soll im nächsten Abschnitt noch etwas näher untersucht werden.

7.3.4 Leistungseintrag

Die Varianten I und II (auf Seite 166) stehen für eine Konstanthaltung des spezifischen Leistungseintrages durch den Rührer. Die Voraussagen der Simulationen können aber nur dann sinnvoll sein, wenn mindestens diese Konstanz auch nachprüfbar aus den Simulationsdaten hervorgeht.

Die Simulationen mit FLUENT erlauben die Überprüfung des simulierten Leistungseintrages. Aus den Kräften¹⁴, die gemäß der Simulation auf alle rotierenden Teile wirken, kann ein Drehmoment berechnet werden. Dies ergibt mit der Rührerdrehzahl den mechanischen Leistungseintrag.

Tabelle 7.4 (Seite 171) gibt die entsprechenden Werte für die zuletzt diskutierten Simulationsrechnungen wieder. Es sind die Berechnungen zur Variation der Drehzahl (Abschnitt 7.3.2, auf Seite 161) sowie diejenigen zur Maßstabsvergrößerung (Abschnitt 7.3.3, auf Seite 166) aufgelistet.

Es fällt auf, daß die Simulation für den Versuch einer Maßstabsvergrößerung bei konstantem Leistungseintrag tatsächlich sehr ähnliche Werte für den kleinen und den vergrößerten Reaktor ergibt. Die numerische Strömungssimulation ergibt also in Vergleichsrechnungen realitätsnahe *Trends* und Verhältnisse.

7.3.5 Zusammenfassung

Es wurde an verschiedenen Beispielen gezeigt, welche *Voraussagen* das aufgestellte numerische Modell über die Vorgänge in (begasteten) Rührkesselreaktoren machen kann, die noch nicht real existieren.¹⁵

Die Vorhersagen für die Mischzeit bei der geometrisch ähnlichen Maßstabsvergrößerung des Versuchsreaktors um den Faktor 100 (Volumenverhältnis) decken sich sehr genau mit den Aussagen

¹⁴Bei der Kräftebilanz werden sowohl Druck- als auch Schubspannungskräfte berücksichtigt.

¹⁵Solche Voraussagen sind besonders für die Maßstabsvergrößerung („*scale-up*“) wertvoll, wenn sehr große Anlagen neu konzipiert und aufgebaut werden sollen.

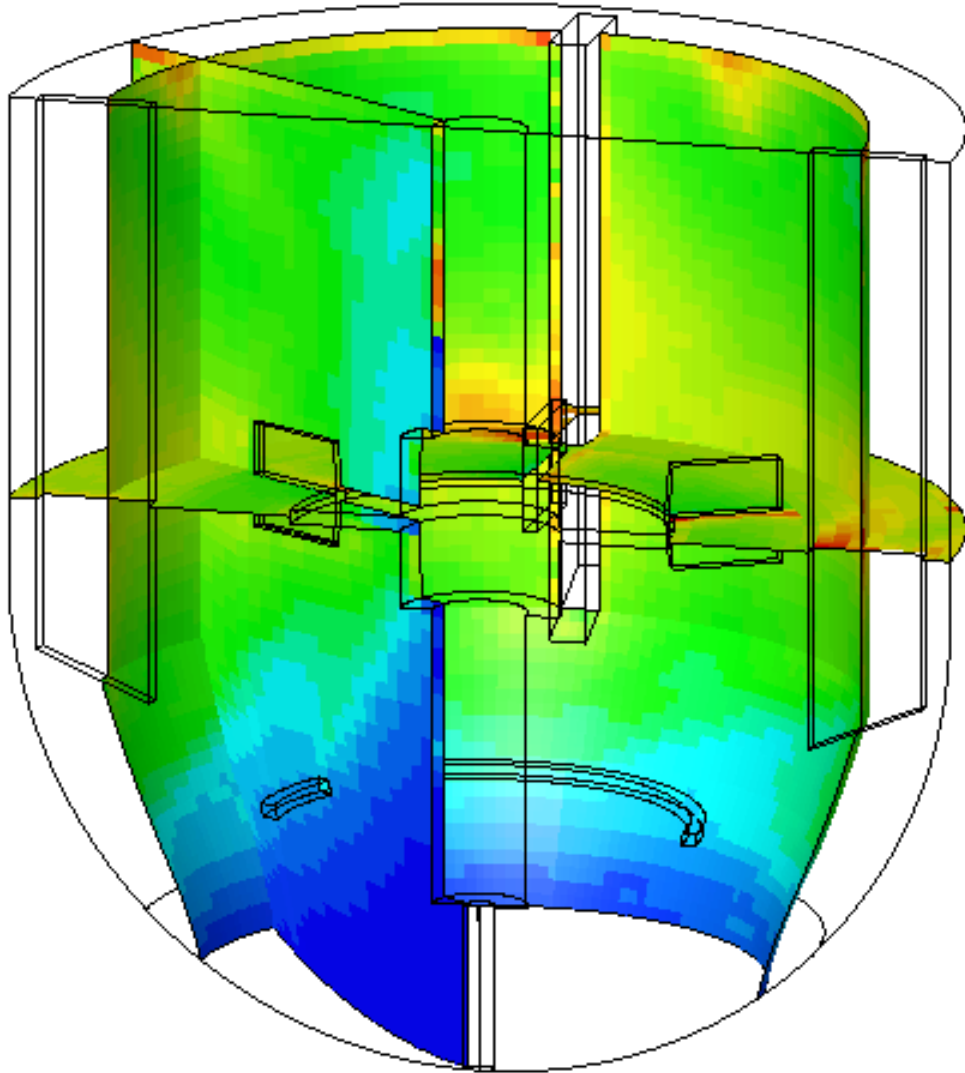


Abbildung 7.15: Das Konzentrationsprofil für Gelöstsauerstoff, wie es vorausgesagt wird, wenn, ausgehend von der dargestellten Simulation in Abbildung 7.7 (Seite 156), das Reaktorvolumen auf das 100-fache vergrößert wird. Rührerleistungseintrag und Gasleerrohrgeschwindigkeit wurden hierbei konstant gehalten (Regel **II** [$\frac{P}{V} + w_{g0}$] in der Aufzählung auf Seite 166). (Abbildung 6.8 auf Seite 138 veranschaulicht die Lage der dargestellten Farbflächen im Reaktor.) Die Farbskala entspricht derjenigen in Abbildung E.1 (Seite 209); die gezeigten Werte liegen hier zwischen $p_{O_2} = 0\%$ LS (Luftsättigung) und $p_{O_2} = 0,75\%$ LS.

Tabelle 7.4: Der mechanische Leistungseintrag in den verschiedenen Simulationsrechnungen. Der Leistungseintrag ergibt sich aus Drehmoment und Drehzahl*. Zusätzlich ist die NEWTONzahl angegeben, die jeweils aus dem mechanischen Leistungseintrag berechnet wurde (vgl. Gleichung 2.1 - 2, auf Seite 13).

$\frac{V}{\text{m}^3}$	0,005 (= 5 l)			0,5 (= 500 l)	
$\frac{n}{\text{U}_{\text{pm}}}$	100	180	324	64,7 [†]	38,78 [‡]
$\frac{\frac{M \cdot \hat{n}}{V}}{\frac{W}{\text{m}^3}} (\S)$	149,0	<u>856,5</u>	4924	<u>912,0</u>	201,0
Ne	4,69	4,62	4,56	4,92	5,04

*Der mechanische Leistungseintrag ist das Produkt aus Drehmoment und Rührerdrehzahl, wobei an dieser Stelle aber die Drehzahl nicht in Umdrehungen je Zeiteinheit, sondern in mathematischen (dimensionslosen) Winkleinheiten („rad“) je Zeiteinheit anzugeben ist; eine Umdrehung entspricht $2 \cdot \pi \cdot \text{rad}$.

[†]Entsprechend konstantem Leistungseintrag ($n^3 \cdot d^2 = \text{const}$).

[‡]Entsprechend konstanter Rührerspitzen Geschwindigkeit ($n \cdot d = \text{const}$).

[§]Das Symbol \hat{n} steht hier für die Drehzahl gemäß Fußnote *.

anerkannter Korrelationen (vgl. Abschnitt 7.3.1, auf Seite 159). (Gegenüber letzteren hat das numerische Modell aber den großen Vorteil, Voraussagen für beliebige Reaktoren, auch ohne einen geometrisch ähnlichen Laborreaktor, geben zu können.)

Weiterhin wurden Voraussagen für den dispersen Gasvolumenanteil und den Stoffaustausch im begasten Reaktor bei verschiedenen Drehzahländerungen und bei der Maßstabsvergrößerung nach unterschiedlichen Kriterien für Drehzahl und Begasungsrate getroffen. Die Voraussagen für die Auswirkungen der Drehzahländerungen decken sich ebenfalls mit Erfahrungswerten und Parametern (Exponenten) aus bekannten Korrelationen, sofern der im kleinen Reaktor sehr starken Einfluß ausübende Stoffaustausch durch die freie Flüssigkeitsoberfläche entsprechend separat berücksichtigt wird (vgl. Abschnitt 7.3.2.3, auf Seite 165).

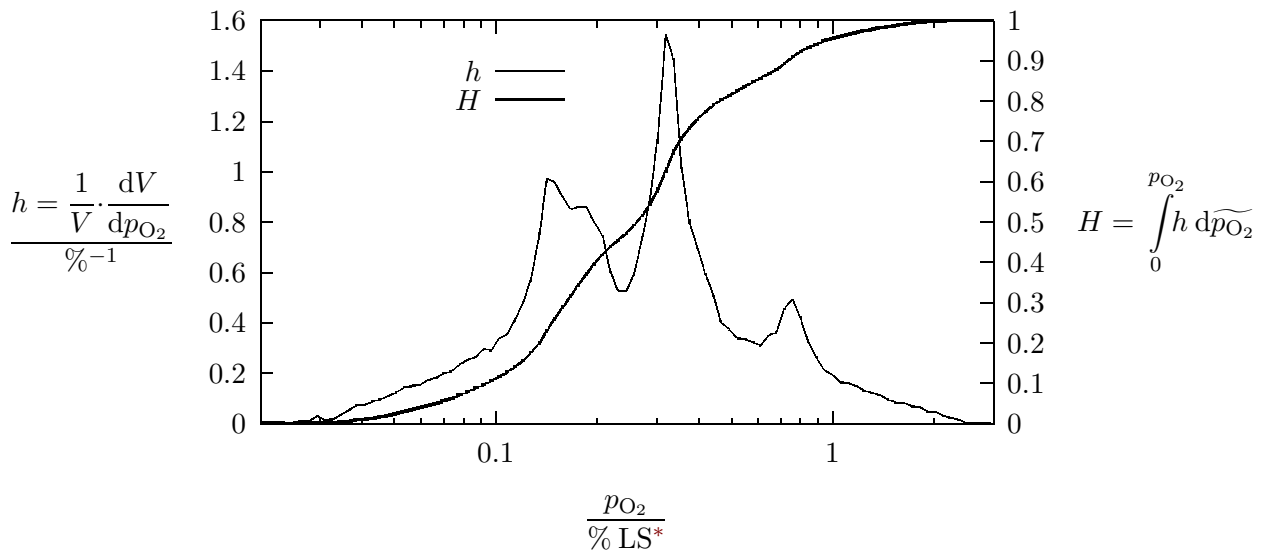
Die vielfältigen Voraussagen für die Maßstabsvergrößerung des begasten Bioprozesses stehen ebenfalls unter dem maßstabsabhängigen Einfluß der freien Oberfläche, so daß detaillierte Vergleiche mit Literaturkorrelationen nicht angebracht sind. Eine entsprechende Kontrolle zeigte auch, daß die Simulation für die Maßstabsvergrößerung bei konstantem Rührerleistungseintrag tatsächlich Konstanz für diese Größe voraussagt (Abschnitt 7.3.4, auf Seite 169).

Insgesamt lassen die unternommenen Beispielrechnungen im Vergleich untereinander und mit Literaturwerten (soweit angebracht) keinerlei Inkonsistenzen oder Fehler erkennen.

7.4 Datenverwertung

Das entwickelte Modell soll voraussagen können, welche Konzentrationsgradienten innerhalb eines aeroben Bioprozesses in einem begasten Rührkesselreaktor auftreten. Damit kann dann prinzipiell beurteilt werden, wie gut im Einzelfall die Forderung nach Homogenität im Reaktionsbehälter erfüllt ist.

Für eine tatsächliche Verwendung der Ergebnisse ist aber die Auswertung und Darstellung in einer einfacheren, aussagekräftigen Form nötig, als sie die Abbildungen im vorigen Kapitel geben. Es muß aus den Simulationsdaten heraus veranschaulicht werden, unter welchen Bedingungen der



Abbildungung 7.16: Verteilungskurven für die Gelöstsauerstoffkonzentration bei reiner Oberflächenbegasung; es sind die Häufigkeitsdichte- (h) und -summenkurven (H) über einem logarithmischen Maßstab für die Konzentration dargestellt.

*, „LS“ = Luftsättigung

Bioprozess tatsächlich abläuft.

7.4.1 Homogenität

Bei der Kontrolle der Homogenität der Gelöstsauerstoffkonzentration im Reaktor ist zu fragen, in welchem Volumenanteil die Konzentration unter ein vorgeschriebenes Minimum fällt, und in welchem Volumenanteil sie ein vorgeschriebenes Maximum überschreitet. Die fragliche Konzentration ist im Reaktorvolumen eine variierende Größe; für sie kann eine *Verteilungsfunktion* dargestellt werden.

Abbildungung 7.16 zeigt die (volumengewichtete) Verteilungsfunktion für die Gelöstsauerstoffkonzentration in einem Fall reiner Oberflächenbegasung. Dargestellt sind die Häufigkeitsdichte- (h) und die Häufigkeitssummenkurve (H) über einem logarithmischen Maßstab der Gelöstsauerstoffkonzentration. Abbildung 7.17 zeigt dieselben Kurven für einen Fall vollständiger Oberflächen- und Blasenbegasung.

7.4.2 Schwankungen

Auf Grund von Inhomogenitäten im Bioreaktor sind die kultivierten Mikroorganismen (bzw. Zellen) bei Ihrer Zirkulation mit der Flüssigkeit im Bioreaktor *zeitlichen* Konzentrationsschwankungen ausgesetzt. Für die Beurteilung der Inhomogenitäten ist es sehr wichtig zu wissen, wie die Organismen auf diese Schwankungen reagieren (vgl. Abschnitt E.2.3, auf Seite 206). Dies hängt zum einen von den Eigenschaften („Zeitkonstanten“) der Organismen ab. Sofern hierfür Daten vorliegen, muß außerdem auch bekannt sein, wie der zeitliche Verlauf der betrachteten Konzentration (von z.B. gelöstem Sauerstoff) in der unmittelbaren Umgebung der einzelnen Zelle aussieht.

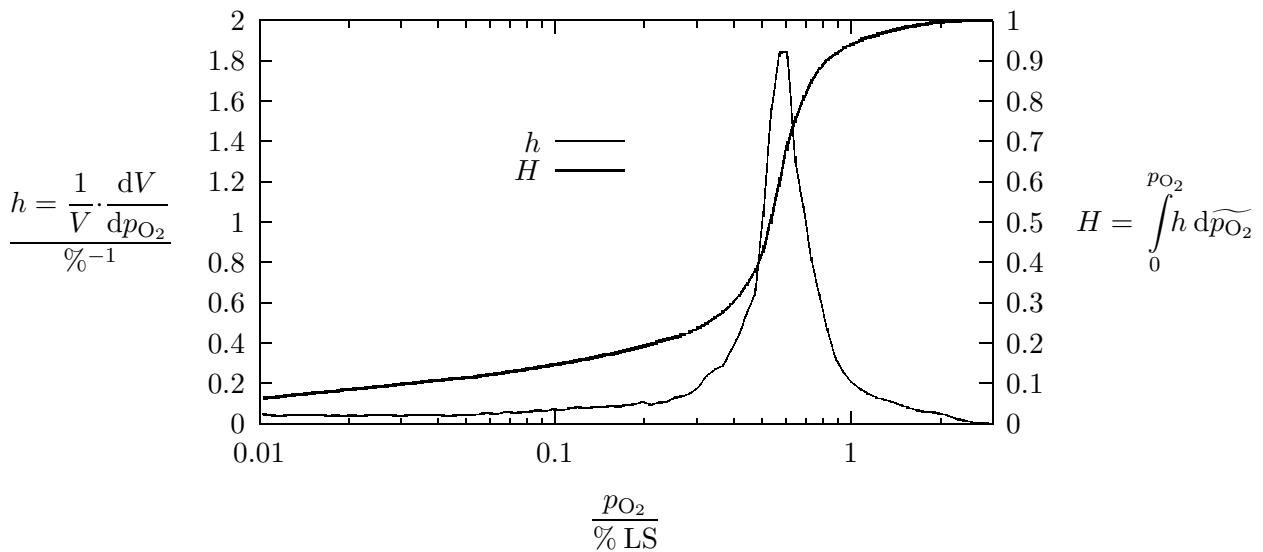


Abbildung 7.17: Verteilungskurven für die Gelöstsauerstoffkonzentration bei voller Oberflächen- und Blasenbegasung; es sind die Häufigkeitsdichte- (h) und -summenkurven (H) über einem logarithmischen Maßstab der Konzentration dargestellt.*

*Die breitgestreckte Verteilung über die kleinsten Sauerstoffkonzentrationen scheint in der Häufigkeitsdichtekurve (h) vernachlässigbar, die Summenkurve (H) zeigt aber deutlich, daß (im hier simulierten Fall) gut 15 % des Reaktorvolumens Sauerstoffkonzentrationen unter 0,1 % Luftsättigung (LS) haben.

7.4.2.1 Trajektorien

Dieser Konzentrationsverlauf an der zirkulierenden Zelle kann unmöglich gemessen werden. Das hier entwickelte Modell ermöglicht es aber, solche Konzentrationsverläufe vorausszusagen. Auf Grund von Turbulenz ist der *Weg*, den kleinste Partikeln (Zellen) in der Strömung nehmen, nicht klar bestimmt; er ist vielmehr ein statistisch verteiltes Zufallsprodukt.

Für die Simulation der Gasblasenströmung wurde eine Technik angewendet, die Trajektorien für Partikeln im Strömungsfeld der kontinuierlichen Phasen berechnet. Dabei werden auch stochastische Einflüsse von der Turbulenz in der kontinuierlichen Phase eingerechnet. Mit genau dieser Methode kann vorausgesagt werden, auf welcher Art Wegen die suspendierten Zellen (Mikroorganismen) durch die Flüssigkeit im Bioreaktor zirkulieren.

Während der Berechnung einer solchen Trajektorie für ein Bakterium im Bioreaktor kann nun fortlaufend die Konzentration an gelöstem Sauerstoff betrachtet werden, der das Bakterium in seiner unmittelbaren Umgebung ausgesetzt ist. Abbildung 7.18 zeigt einen solchen Konzentrationsverlauf an einem Bakterium für den Fall reiner Oberflächenbegasung. Es handelt sich um einen kleinen Ausschnitt aus einer unendlichen Serie, die wegen der Turbulenz keinerlei Periodizität enthält.

7.4.2.2 Ergebnisse

Man sieht in der Kurve jeweils steile Anstiege und anschließend einen langsamen, kontinuierlichen Abfall der Konzentration in der unmittelbaren Umgebung des betrachteten Bakteriums. Das Flüssigkeitsvolumen, in und mit dem sich das Bakterium durch den Reaktor bewegt, gerät von

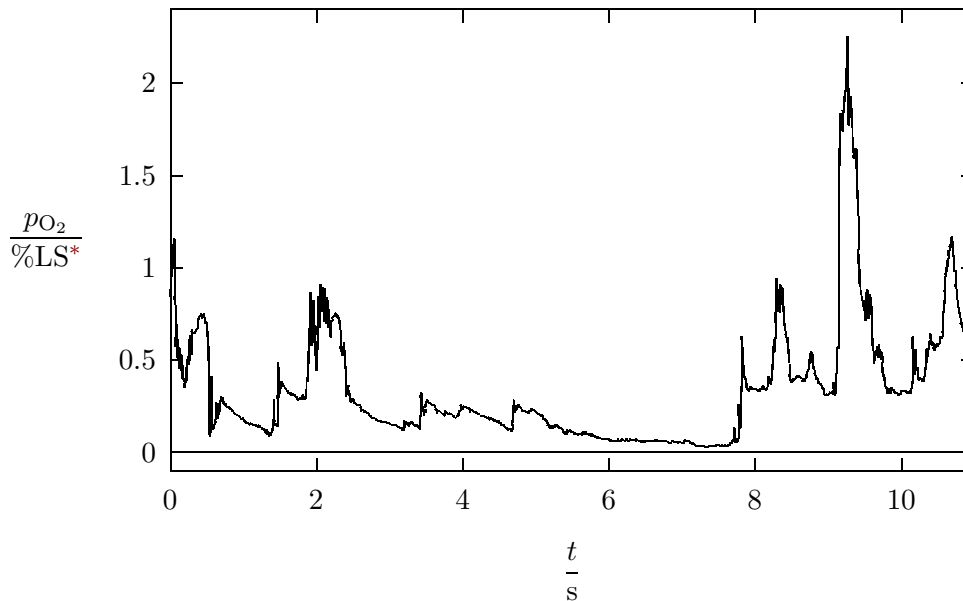


Abbildung 7.18: Der zeitliche Verlauf der Sauerstoffkonzentration, der ein Bakterium während seiner Zirkulationsbewegung durch den Reaktor in einer nur durch die Oberfläche begasten Fermentation ausgesetzt ist.

*„LS“ = Luftsättigung

Zeit zu Zeit in Kontakt mit sehr sauerstoffreicher Umgebung nahe der freien Oberfläche, was einen sprunghaften Anstieg der Sauerstoffkonzentration bewirkt. Auf dem weiteren Weg durch den Reaktor wird dieser Sauerstoff langsam aufgezehrt, bis, nach einer unbestimmten Zeitspanne, das Volumenelement wieder in der Nähe der Flüssigkeitsoberfläche mit Sauerstoff versorgt wird.

Abbildung 7.19 zeigt eine analoge Darstellung für den (in dieser Arbeit untersuchten) Fall vollständiger Blasen- und Oberflächenbegasung. Hier ist die volumetrische Sauerstoffverbrauchsrate der Kultur erheblich höher, so daß trotz des wesentlichen höheren β_{la} -Wertes mit Blasenbegasung dieselben (näherungsweise mikroaeroben) Verhältnisse erhalten bleiben. Dadurch existieren nunmehr Zonen mit unmeßbar geringer Sauerstoffkonzentration.

Die Kurve zeigt sehr deutlich, wie das suspendierte Bakterium variierende Zeiträume in verschiedenen Zonen des Reaktors verbringt. Insbesondere in der nahezu anaeroben Zone direkt unter der Rührwelle kommt es immer wieder zu Verweilzeiten in der Größenordnung einer Sekunde. (Hier herrscht eine ausgebildete Rotationsströmung mit nur wenig Austausch mit der Umgebung.)

7.5 Zusammenfassung

Das vorliegenden Kapitel zeigt zunächst, wie mit dem entwickelten numerischen Modell die experimentell untersuchten Prozeßzustände nachgebildet wurden und dabei verschiedene Modellparameter bestimmt werden konnten. Deren Werte zeigten sehr gute Übereinstimmung mit entsprechenden Literaturwerten (vgl. Abschnitt 7.1.5, auf Seite 147).

Anschließend wurden die Voraussagen des Modells für die räumlichen Konzentrationsprofile für Gelöstsauerstoff mit den entsprechenden Meßwerten verglichen. Es zeigten sich gewisse Abweichungen, die u.a. in Schwachstellen bei den Messungen begründet sind (Sonde im Bereich der freien Oberfläche). Weiterhin wurde als Schwäche im numerischen Modell die Tatsache identifiziert, daß

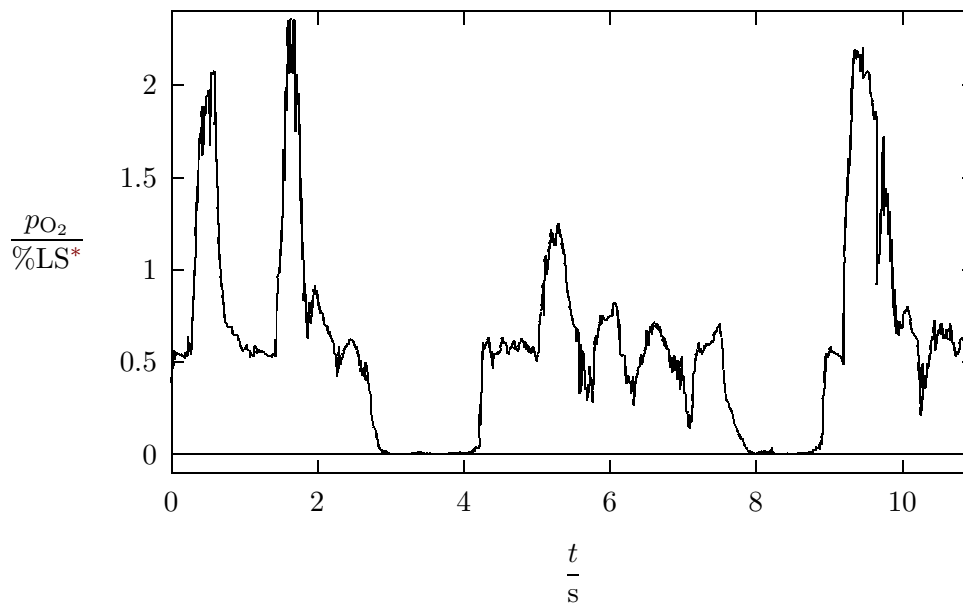


Abbildung 7.19: Der zeitliche Verlauf der Sauerstoffkonzentration, der ein Bakterium während seiner Zirkulationsbewegung durch den Reaktor in einer vollständig mit Blasen und an der Oberfläche begasten Fermentation ausgesetzt ist.

*„LS“ = Luftsättigung

die Auswirkungen der dispersen Gasphasenströmung auf die kontinuierliche Flüssigkeitsströmung vernachlässigt werden (vgl. Abschnitt 7.2.4, auf Seite 158). Dies ist mittlerweile mit der aktuellen Version des verwendeten Simulationsprogramms (FLUENT 5.5 bzw. FLUENT 6.0) ohne weiteres zu beheben.

Weiterhin wurden diverse Beispielberechnungen ausgeführt, um zu demonstrieren, welche Voraussagen das Modell z.B. für die Maßstabsvergrößerung hin zur industriellen Produktionsanlage leisten kann. Die Ergebnisse aller Rechnungen wurden untereinander und mit Literaturkorrelationen verglichen, ohne daß Inkonsistenzen oder unplausible Ergebnisse auffielen (Abschnitt 7.3.5, auf Seite 169).

Schließlich wurde aufgezeigt, welche besonderen Ergebnisdarstellungen Informationen über spezielle Prozeßbedingungen erschließen, die ohne die numerische Simulation schwer zu gewinnen und bisher nie veröffentlicht worden sind.¹⁶

7.6 Diskussion

Ziel dieser Arbeit war es, ein auf *prädiktiver* Strömungssimulation basierendes, numerisches Modell zu entwickeln, das den Stoffaustausch im begasten Rührkessel und, mit einem Modell für den Stoffumsatz, stationäre Konzentrationsgradienten in der Flüssigkeit voraussagen kann.

Literatur. In der Literatur finden sich etliche Ansätze mit ähnlichem Ziel. Fast alle wenden für die Strömungssimulation Rührer-Ersatz-Modelle an. Reine Strömungssimulationen in einphasigen Rührkesseln verwenden auch geometrisch und zeitlich auflösende Rührersimulationen, die also

¹⁶Nach der Kenntnis des Autors.

Voraussagen der Flüssigkeitsströmung erlauben, ohne Meßdaten für den eingesetzten Rührer zu verwenden. Für die Voraussage der Mehrphasenströmung in begasten Rührkesseln wird in jüngster Zeit zunehmend das EULER/EULER-Modell verwendet.

Neuerung. In der vorliegenden Arbeit wurde zum ersten Mal eine (den Rührer geometrisch auflösende) *prädiktive* Strömungssimulation im Rührkessel mit einem Mehrphasenströmungsmodell gekoppelt, um ein Kompletmodell für Stoffaustausch- und -transport aufzubauen. Dabei wurde das EULER/LAGRANGE-Modell zur Simulation der Mehrphasenströmung im begasten Rührkessel eingesetzt.

Neben den Komponenten der reinen Strömungssimulation wurden Blasengrößen und -verweilzeiten, spezifische Grenzflächen und Stoffaustauschkoeffizienten, Stofftransport und -umsatz und somit letztlich die stationären Konzentrationsgradienten vorausgesagt.

Das Modell erfordert keinerlei Strömungsdaten; lediglich einige vom Stoffsystem abhängige Modellparameter müssen einmal, z.B. in einer Laborfermentation, ermittelt werden¹⁷ (s. Abschnitt 7.1.5, auf Seite 147). Anschließend ermöglicht das Modell *Voraussagen* über Strömung, Stoffaustausch und -transport in nicht existierenden, nie untersuchten Geometrien, Rührer-Reaktor-Konfigurationen oder Behältermaßstäben.

7.6.1 Modelleigenschaften

Dadurch, daß die Eigenschaften der disperse Gasphase mit der EULER/LAGRANGE-Methode beschrieben werden, erfaßt das Modell in realistischer Weise das lokale Nebeneinander großer und kleiner sowie sauerstoffreicher (junger) und sauerstoffarmer (alter) Gasblasen. An jedem Punkt im Reaktor existieren *Verteilungen* von Größe, Alter, Zusammensetzung und *Strömung* (Richtung und Geschwindigkeit) der dispersen Gasblasen. Dies kann nur mit dem EULER/LAGRANGE-Modell für Mehrphasenströmungen (im Gegensatz zu dem EULER/EULER- und anderen Kontinuumsmodellen) korrekt beschrieben werden (siehe auch Abschnitt 7.2.2.5, auf Seite 151).

Durch die Kombination einer den Rührer geometrisch auflösenden Strömungssimulation mit einem leistungsfähigen Modell für Mehrphasenströmungen können Wechselwirkungen zwischen Flüssigkeits- und Gasphase am Rührer sehr detailliert beschrieben werden. Lokale Turbulenzspitzen, die zur Blasenzerteilung wie auch zum Stoffaustausch beitragen, werden räumlich aufgelöst; der Weg der Gasblasen durch diese Bereiche und ihre Verweilzeit darin werden dabei genau erfaßt (s. Abschnitt 7.2.3.3, auf Seite 157).

Im Teilmodell für den Stoffaustausch wird auch der Austausch durch die freie Flüssigkeitsoberfläche mit einem validierten, turbulenzabhängigen Ansatz berücksichtigt. Dies ist sehr wichtig, weil sein Beitrag zum Gesamtaustausch stark von der Reaktorgröße abhängt, so daß ohne seine genaue Quantifizierung jede Voraussage für die Maßstabsvergrößerung ungenau werden muß (vgl. auch Abschnitt 7.3.2.3, auf Seite 165).

7.6.2 Limitierungen

Es bleiben einige Gesichtspunkte zu nennen, an denen die Simulation nur eine vereinfachte Darstellung der Realität gibt. An diesen Stellen ist in Zukunft weitere Entwicklungsarbeit zu leisten, um das Modell zu verbessern und zu einer breiteren, allgemeineren Anwendbarkeit zu bringen.

¹⁷Dazu muß der Prozeß im verwendeten Laborreaktor numerisch simuliert werden, damit die Modellparameter eingestellt (angepaßt) werden können. Der Laborreaktor braucht dafür aber keinerlei geometrische Ähnlichkeit mit der geplanten bzw. numerisch zu untersuchenden Großanlage zu haben.

Die Entkopplung von Flüssigkeits- und Gasströmung in der Strömungssimulation.

Die Gasblasentrajektorien werden auf der Grundlage des Strömungsfeldes für die Flüssigkeit berechnet. Es wird aber kein Einfluß der (dispersen) Gasphase auf die Flüssigkeitsströmung im Modell realisiert. Das führt zu einer zu geringen Aufwärtsbewegung der Gas-Flüssigkeits-Strömung, z.B. im radialen Ausströmbereich des Rührers.¹⁸ Letzteres muß geringfügig überhöhte Gasvolumenanteile im unteren Teil des Reaktors zu Folge haben, was dort (im Modell) auch zu (geringfügig) überhöhten Gelöstsauerstoffkonzentrationen führt.

Wie bereits erwähnt, ist inzwischen mit der aktuellen Version von FLUENT die voll instationäre Simulation von Mehrphasenströmungen nach der EULER/LAGRANGE-Methode möglich. Hierbei werden nicht *Trajektorien* einzelner Blasen („-stränge“) berechnet, sondern es werden wirklich einzelne *Gasblasen* verfolgt. (Das bedeutet einen höheren numerischen Computeraufwand, ermöglicht aber die maximal naturgetreue Simulation instationärer disperser Mehrphasenströmungen). Mit dieser Methode ließe sich die in dieser Arbeit zu Grunde gelegte Strömungssimulation verbessern. (Vgl. Abschnitt 7.2.4 und darin Fußnote 9, auf Seite 158.)

Der große Vorteil aus der „zweiten Entkopplung“ (s. Abschnitt 5.4.2.2 auf Seite 110) ginge dabei aber verloren. Es wäre daher eher sinnvoll, die herkömmliche EULER/LAGRANGE-Methode (mit *Blasentrajektorien*) so zu modifizieren, daß (zeitgemittelte) Impulsquellterme von der Gasblasenströmung in die *instationäre* Strömungssimulation eingebracht werden. Dies stellt sicherlich wieder nur eine Näherungslösung dar; da aber gezeigt werden konnte, daß die Strömung lokal im jeweiligen Bezugssystem (!) nur wenig mit der Zeit variiert, kann Ihr Vorteil („zweite Entkopplung“, s.o.) diesen Nachteil deutlich überwiegen.

Blaseneintrag an der freien Oberfläche. In der Realität werden an der freien Flüssigkeitsoberfläche durch die (vom Rührer erzeugte) Turbulenz kleine Gasblasen erzeugt, die dann mit der Zirkulation in die Tiefe gerissen und gleichwertiger Bestandteil der dispersen Gasphase werden [313]. Dies kann vom numerischen Modell nicht vorausgesagt werden.

Bei hinreichend geringen Drehzahlen ist dieser Effekt vernachlässigbar. Bei steigender Drehzahl (ohne Blasenbegasung) erscheint zuerst eine schwache Trübung; sie rührt von so kleinen Blasen her, daß diese mit dem bloßen Auge nicht als Blasen erkennbar sind. Ihr Volumen ist sehr gering, so daß Ihr Beitrag zum tatsächlichen Sauerstoffeintrag ebenfalls vernachlässigbar bleibt. (Sie erreichen nach einem kleinen Bruchteil ihrer gesamten Verweilzeit im Reaktor bereits ein Stoffaustauschgleichgewicht mit der umgebenden Flüssigkeit [Sauerstoffverarmung in der mikrodispersen Gasphase].¹⁹)

Bei höheren Drehzahlen und damit intensiverer Zirkulationsströmung werden zunehmend auch größere Blasen von der Oberfläche in die Tiefe mitgerissen, so daß ein merklicher Sauerstoffeintrag von denjenigen Gasblasen entsteht, die an der Oberfläche generiert werden. Dieser wird, bei Messungen gemäß den beschriebenen Experimenten, zusammen mit dem Stoffaustausch durch die freie Flüssigkeitsoberfläche erfaßt; dementsprechend enthält die Proportionalitätskonstante für den linearen Stoffaustauschkoeffizienten an der freien Oberfläche ggf. einen entsprechenden Anteil.

¹⁸Dies wurde auch bereits in Punkt 7.2.3.2 der Aufzählung auf Seite 157 erwähnt.

¹⁹In höherviskosen Flüssigkeiten steigen so kleine Blasen nur sehr langsam auf, so daß sie lange in der Flüssigkeit zirkulieren und einen bedeutenden Gasvolumenanteil ausmachen können [153, 283]. Auch in diesem Fall kann man Gleichgewicht zwischen den Sauerstoffkonzentrationen in Gasblasen und Flüssigkeit annehmen, so daß der tatsächliche Beitrag zum Sauerstoffeintrag vernachlässigbar bleibt. Wegen ihrer extrem großen *spezifischen Phasengrenzfläche* a führen diese extrem kleinen, zirkulierenden Gasblasen aber zu einer erhöhten *apparenten Sauerstofflöslichkeit* bei der Betrachtung des konvektiven Stofftransportes für „gelösten“ (einschließlich fein dispergiertem) Sauerstoff.

Die gute Übereinstimmung der gefundenen Proportionalitätskonstante mit Literaturwerten (s. Abschnitt 7.1.3.3, auf Seite 146) legt nahe, daß der Stoffeintrag durch oberflächengenerierte Blasen im experimentell untersuchten Betriebszustand (180 Upm) vernachlässigbar war. In Prozessen, wo das diskutierte Phänomen eine erhebliche Rolle spielt, ist aber mit einem partiellen Versagen des numerischen Modelles bei der Vorhersage zur Maßstabsvergrößerung zu rechnen.

Koaleszenz von Blasen mit der freien Oberflächen. In der Simulation muß eine Bedingung dafür formuliert werden, wann eine Blase tatsächlich mit der freien Flüssigkeitsoberfläche koagulierte, so daß ihr Inhalt in den Kopfraum übergeht und ihre Lebensdauer endet. In dieser Arbeit wurde als Bedingung definiert, daß der Blasenmittelpunkt bis auf einen Abstand von einem Blasenradius an die freie Oberfläche herankommt.

Die Einstellung dieses geforderten Grenzabstandes hat Einfluß auf die simulierte Blasenverweilzeit bei gleichem Blasendurchmesser. Seine Wahl hat also, wenn die Modellparameter an Meßergebnisse angepaßt werden, Einfluß auf die sich ergebende *kritische WEBERzahl*. Es bleibt zu untersuchen, inwieweit die Genauigkeit der Modellvoraussagen, insbesondere bei der Maßstabsvergrößerung, von der Wahl dieses Parameters abhängt.

Koaleszenz von Blasen miteinander. Im untersuchten Bioprozeß kann wegen der Zusammensetzung des Fermentationsmediums eine hochgradige Inhibition der Blasenkoaleszenz angenommen werden. Im Hinblick auf eine Verallgemeinerung des Modells wird in Abschnitt 5.3.4.3 (Seite 106) die Möglichkeit diskutiert, ein Teilmodell für lokale Blasenkoaleszenz einzuführen.

Auch in koaleszenzgehemmten Medien tritt leicht Koaleszenz auf, wo sich Blasen auf Grund der Flüssigkeitsströmung sammeln und aufeinander treffen. Dies geschieht besonders auf der Unterdruckseite von Rührerblättern, wo die Blasen zu großen „Kavitäten“ koaleszieren. Diese haben wiederum erheblichen Einfluß auf die Flüssigkeitsströmung und den mechanischen Rührerleistungseintrag. Diese Tatsachen werden derzeit vom Modell vernachlässigt – hier ist grundlegende Entwicklungsarbeit notwendig, da noch keine vielversprechenden Ansätze zur Beschreibung dieser Phänomene identifiziert werden konnten.

Details der Blasenverteilung. Die (turbulenzabhängige) Blasenverteilung ist im Modell implementiert; dabei können aber nur relativ unrealistische *symmetrische* Teilungen ausgeführt werden, durch die die realen *unsymmetrischen* Teilungen angenähert werden müssen. Ein realistischeres Modell würde, abhängig von örtlichen Parametern und mit Zufallszahlen, stochastische Volumenanteile an die Tochterblasen zuweisen; außerdem sollte für jede Tochterblase eine eigene Trajektorie vom Ort der Blasenverteilung aus berechnet werden.

7.6.3 Schlußwort

Numerische Strömungssimulation (CFD, „*computational fluid dynamics*“) erlaubt die Vorhersage von Strömungen und – wie in dieser Arbeit gezeigt werden sollte – auch strömungsabhängigen Prozessen wie Stoffaustausch und -transport. Damit wird es möglich, Experimente durch Simulationsrechnungen zu ersetzen. Dies ist besonders dort von Vorteil, wo Experimente aufwendig und teuer sind (Maßstabsvergrößerung), oder wo z.B. industrielle Störfälle oder Brände in Gebäuden untersucht werden, wo sich realistische vollskalige Experimente von selbst verbieten.²⁰

²⁰Die Ausbreitung freigesetzter giftiger Dämpfe oder Rauchgase kann mit ungefährlichen Markersubstanzen experimentell nachgestellt werden; die Auswirkungen der hohen Temperaturen eines Brandes auf die Strömung in einem

Neben *Vorhersagen* für Geometrievarianten oder veränderte Betriebszustände kann die Simulation auch detaillierten *Einblick* in die bestimmenden Vorgänge eines untersuchten Prozesses geben. Parameterstudien und Sensitivitätsanalysen erlauben es, generell Entwicklungsprozesse zu beschleunigen und fertige Produkte/Prozesse bei reduzierten Entwicklungskosten robuster und sicherer auszulegen.

Im heutigen Stand der Simulationstechnik existieren noch Schwächen und Unsicherheiten in der Abbildung realistischer Vorgänge im numerischen Modell. Turbulenz z.B. muß i.d.R. durch (halb-empirische) mathematische Modelle dargestellt werden; ähnliches gilt für alle Arten von Austauschkoefizienten (Impuls, Wärme, Stoff). In sicherheitsrelevanten Bereichen sollte also die Simulation nicht unkritisch als Ersatz für alle Experimente angenommen werden. Neben billigen Voruntersuchungen und Designstudien kann sie aber vor allem dort gute Dienste leisten, wo Experimente unmöglich sind (z.B. durchgehende Reaktionen oder [Kern-] Reaktoren).

Die vorliegenden Arbeit will aufzeigen, welche weitergehenden Prozeßsimulationen bereits heute auf rein *prädiktive* numerische Strömungssimulation aufgebaut werden können. Außerdem wurde an Hand verschiedener Validierungen mit Literaturwerten und eigenen Experimenten gezeigt, für wie realistisch die Simulationsergebnisse gelten dürfen.

Das aufgestellte numerische Modell bedarf noch bestimmter Verbesserungen und Erweiterungen, um auf breiter Basis anwendbar und profitabel zu sein. Auch die Validierungsexperimente sollten, unter besonderer Beachtung industriell relevanter Fragestellungen, erweitert werden.

Es konnte aber ein großes Potential in der Anwendung der numerischen Strömungssimulation mit einem kommerziellen Code (FLUENT) aufgezeigt werden, und die ausgeführten Validierungen zeigten große Realitätsnähe der Ergebnisse in Form von angepaßten Modellparametern wie auch echten Voraussagen.

Gebäude können aber nicht mehr im Experiment in Originalgröße untersucht werden, ohne das reale Gebäude zu zerstören. Experimente im verkleinerten Modellmaßstab können aber nur selten als zuverlässige Informationsquelle dienen, da z.B. Turbulenz nicht einfach skalierbar ist.

Anhang A

Zusammenfassung

Sehr viele Prozesse in der chemischen und biotechnologischen Verfahrenstechnik werden in Rührkesseln ausgeführt. Dies sind vielfach bewährte, vielseitige Apparate für Reaktionen und Vorgänge in Flüssigkeiten. Zusätzlich können, entkoppelt von der Flüssigkeitsvermischung durch den Rührer, gasförmige Reaktionskomponenten als Oberflächen- und Blasenbegasung eingeführt werden.

Bei der Entwicklung neuer Produktionsanlagen, wie auch bei der Optimierung bestehender Einrichtungen, ist die mathematische Modellierung ein wichtiges Werkzeug. Mit der mathematischen Beschreibung der Vorgänge und Zusammenhänge in Anlagenteilen wie z.B. Reaktionsapparaten können aufwendige Experimente eingespart und der Zeitbedarf für die Entwicklung bis zur Markteinführung eines neuen Produktes erheblich reduziert werden.

In Rührkesseln ist, neben der Vermischung der gerührten Flüssigkeit, der Stoffaustausch zwischen der Flüssigkeit und einer dispersen Phase eine häufig ausgeführte Grundoperation, deren Effizienz in vielen Prozessen über die Produktionsfähigkeit einer Anlage entscheiden kann.

Zur mathematischen Modellierung und Vorhersage der Stoffaustauschleistung begaster Rührkessel werden derzeit überwiegend Ansätze verwendet, die zu unterschiedlichen Teilen auf empirischen Daten basieren. Korrelationen und die meisten Prozeßmodelle betrachten dabei den Reaktor als gradientenfreien, ideal durchmischten Reaktionsbehälter.

Einige wenige strukturierte Modelle berücksichtigen auch Inhomogenitäten innerhalb des Reaktors; hierfür werden Strömungsdaten aus Messungen oder Simulationen verwendet. Im letzteren Fall wurden bisher immer Meßdaten für die Strömung in unmittelbarer Rührernähe verwendet, um das Strömungsfeld im Rest des Apparates vorauszusagen (Rührer-Ersatz-Modell).

In der vorliegenden Arbeit wurde erstmals ein numerisches, räumlich hochauflösendes Modell für die Vorgänge und Zusammenhänge beim Stoffaustausch in begasten Rührkesseln entwickelt, das echte Voraussagen für unerforschte Geometrien und Maßstäbe erlaubt.

Das ortsauflösende Modell verwendet Strömungsdaten für den gerührten Reaktor, die aus numerischer Strömungssimulation mit dem kommerziellen Programm FLUENT gewonnen werden. Hierbei werden *keine* Strömungsmeßdaten für das jeweilige Rührorgan benötigt, sondern der Rührer wird in seiner genauen Geometrie dargestellt, so daß mit Drehzahl und Stoffeigenschaften die turbulente Strömung im Rührkessel vorausberechnet werden kann.

Anschließend wird im numerischen Modell, in derselben hohen räumlichen Auflösung, die turbulente Strömung der dispersen Gasphase (Blasen) vorhergesagt. Dabei werden Stoffaustausch und turbulenzabhängige Blasenverteilung sowie deren Einfluß auf das Verhalten der Gasblasen berücksichtigt. Die disperse Gasphase wird nach der EULER/LAGRANGE-Methode (diskrete Trajektorien) in die Simulation einbezogen, so daß breite Verteilungen bezüglich Größe, Zusammensetzung und

Strömungsverhalten der Blasen physikalisch korrekt im Modell abgebildet werden können.

Basierend auf der detaillierten, ortsauflösenden Vorhersage von Flüssigkeits- und Gasströmung werden Stoffaustausch, -transport und -verbrauch lokal an jedem Punkt im Reaktor bilanziert. Es ergeben sich (im konkreten Anwendungsbeispiel) räumliche Profile für die Konzentration von gelöstem Sauerstoff im Reaktor. Maxima und Minima können mit Wert und Position identifiziert werden, und die Auswirkungen der berechneten Inhomogenitäten auf den ausgeführten (Bio-) Prozeß können in vielfältiger Weise dargestellt werden.

Die Arbeit erklärt die theoretischen Grundlagen sowie die praktische Aufstellung des numerischen Gesamtmodells. Modellparameter werden aus eigenen Messungen abgeleitet und mit Literaturwerten verglichen, wobei sich jeweils eine sehr gute Übereinstimmung ergibt.

Weiterhin werden detaillierte Messungen der Inhomogenitäten in einem Bioprozeß im begasten Rührkesselreaktor vorgestellt. In der schwach begasten Kultivierung einer Bakteriensuspensionskultur wurden ortsauflösend niedrige Gelöstsauerstoffkonzentrationen mit besonderer Meßtechnik erfaßt. Anschließend werden weitere Simulationsergebnisse mit den Ergebnissen dieser eigenen Messungen verglichen; es zeigt sich ebenfalls gute Übereinstimmung.

Eine Limitierung des Modells in seinem beschriebenen Entwicklungszustand liegt darin, daß der Einfluß der Gasblasenströmung auf die Flüssigkeitsströmung vernachlässigt wird. Dies läßt sich durch eine logische Fortentwicklung des Modells beheben. Andere Eigenschaften des Modells beschränken seine Genauigkeit, ermöglichen aber eine massive Reduzierung des numerischen Aufwandes gegenüber höchstmöglicher Genauigkeit.

Für die Einbeziehung weiterer physikalischer Phänomene (Blasenkoaleszenz) werden denkbare Ansätze diskutiert. Neben bestimmten Entwicklungsschritten zur Verbesserung des Modells sollten in Zukunft weitere Validierungsexperimente gefunden und mit entsprechenden Simulationsrechnungen verglichen werden, um die Leistungsfähigkeit des entwickelten Modells in der Vorhersage des Stoffaustausches und der Inhomogenitäten in begasten Rührkesseln zu überprüfen.

Anhang B

Summary

Many processes in the chemical and biochemical engineering industry are run in stirred tank reactors. This type of equipment has proven its applicability in many years for a large number of different reactions and tasks in liquids. Mixing can be controlled flexibly by impeller design, size, and speed. In addition, surface and bubble aeration can introduce a second phase with gaseous reactants.

Mathematical modelling is an important tool during the planning of new production plants as well as the optimisation of existing facilities. By formulating the functioning of single pieces of equipment mathematically, the required time for the development cycle of a complete production plant can often be reduced substantially.

In aerated stirred tank reactors, mixing and mass transfer between liquid and gas are the important unit operations performed. The efficiency of the equipment in this respect can often limit the total productivity of a whole production line.

Mathematical models of the mass transfer in those reactors most often neglect any spatial variation of model variables throughout the reactor volume. Empirical correlations as well as many of the more sophisticated reactor and reaction models assume complete mixedness. Purely empirical coefficients are sometimes used to account for limited mixing effects.

Some modern structured models already account for inhomogeneities within a single reactor. For this, information about the flow field within the reactor is needed. Either measured data (spatial velocity and turbulence profiles) or numerically simulated flow information is used. In the latter case, measurements of the flow velocities and turbulence quantities in the immediate outflow of the impeller are usually the basis for the simulation of the fluid flow in the rest of the tank volume.

The present thesis shows for the first time a numerical model of the transport and mass transfer processes in aerated stirred tanks, at high spatial resolution, that enables the user to make predictions for geometries and scales that have never been investigated in reality before.

The model uses fluid flow information that is gained from numerical simulation with the commercial code **FLUENT**. In contrast to earlier work, no measured impeller data (impeller jet velocity and turbulence profiles) are needed, but the detailed impeller geometry is used for a real prediction of the flow field driven by its rotation.

Subsequently, a numerical model of similar spatial resolution is established for the turbulent flow of the dispersed gas phase (bubbles). Within this, mass transfer and (turbulence dependent) bubble disruption and their effect on the dispersed phase flow are considered. The bubbles' flow is calculated using the **EULERIAN/LAGRANGIAN** technique, which employs the calculation of many

discrete bubble trajectories. Because of this, the broad distribution of size, composition and flow behaviour of the dispersed phase at any position in the tank can be accounted for without any simplification or assumption.

Basing on the detailed, spatially resolved prediction of the two-phase flow, dissolved oxygen transfer, transport, and consumption are balanced numerically at every point in the reactor volume. This results in stationary spatial oxygen concentration profiles. Maximum and minimum concentrations and the positions of their appearance can be detected, and the effects of the predicted inhomogeneities on the investigated process or bioprocess can be quantified and visualised in various ways.

The thesis explains in detail the theoretical background and the stepwise development of the complete numerical model. Certain model parameters are determined from own measurements, and are compared to appropriate literature data. Good correspondence has been found.

Furthermore, detailed measurements of the dissolved oxygen concentration at different locations in an aerated stirred bioprocess have been performed using a new-type measurement equipment for lowest dissolved oxygen concentrations. The results found are interpreted in the text, and they are used to validate respective simulations of the investigated process states. Fairly good agreement is found, with some weaknesses both in the model and the measurements showing up.

The most important limitation of the model is that it currently neglects the effect of the dispersed phase (bubbles) on the liquid phase flow. This can be relieved by a consistent extension of the existing model through some continued development work. Other properties of the model affecting its accuracy enable its remarkable modesty with respect to computational resources.

Finally, some approaches for the inclusion of other physical phenomena such as bubble coalescence are discussed. Apart from certain development steps to improve the model where it has its limitations today, other validation experiments should be found and used to investigate the power of the model as a tool for the real *prediction* of mass transfer and inhomogeneities in aerated stirred tank reactor processes.

Anhang C

Symbolverzeichnis

C.1 Lateinische Buchstaben

Größe	Einheit	Bedeutung
A	1 m^2	Fläche, Phasengrenzfläche, Querschnittsfläche.
a	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{m}^3} = 1 \text{ m}^{-1}$	Volumenbezogene („spezifische“) Phasengrenzfläche; <u>außerdem</u> :
	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	„Temperaturleitzahl“: $a = \frac{\zeta}{\rho \cdot c_p}$; es ergibt sich dieselbe Einheit wie für den Diffusionskoeffizienten \mathcal{D} (vgl. hierzu Tabelle C.3 auf Seite 192).
a_p	$1 \frac{\text{m}}{\text{s}^2}$	Beschleunigung, die eine Partikel erfährt.
B_{Ξ}	1	Proportionalitätskonstante („Vorfaktor“) in einer Gleichung zur Bestimmung der (beliebigen) Größe Ξ .
b	1	Exponent, allgemein.
b_Z	1	Exponent an einer Kennzahl Z in einer dimensionslosen Korrelation.
C	1	Proportionalitätskonstante, allgemein.
C_w	1	Widerstandskoeffizient, z.B. bei der Körperumströmung.
C_{μ}	1	Empirische Proportionalitätskonstante im k, ϵ -Turbulenzmodell; $C_{\mu} = 0,09$.
$C_{1\epsilon}, C_{2\epsilon}$	1	Dimensionslose Konstanten im k, ϵ -Turbulenzmodell; vgl. Abschnitt 4.2.3.1, auf Seite 70.
c	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Konzentration, allgemein.
c'	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Zeitgemitteltes Ausmaß der – durch Turbulenz hervorgerufenen – stochastischen <i>zeitlichen</i> Schwankung einer <i>lokalen</i> Konzentration einer gelösten Substanz im strömenden Fluid.
c_g	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Konzentration einer chemischen Substanz in einer gasförmigen Mischung.
c_l	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Konzentration einer gelösten Substanz in einer Flüssigkeit.
c_l^*	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Sättigungskonzentration eines gelösten Gases in einer Flüssigkeit beim herrschenden Partialdruck der Substanz im angrenzenden Gasraum; vgl. Abschnitt 2.3, auf Seite 21.

Größe	Einheit	Bedeutung
c_p	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^2 \cdot \text{K}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg} \cdot \text{K}}$	Wärmekapazität bei konstantem Druck.
c_s	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Massenkonzentration („Partialdichte“) einer chemischen Komponente s in einem Fluid.
D	1 m	Reaktor-, also Kesseldurchmesser.
\mathcal{D}	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	Diffusionskoeffizient, z.B. einer gelösten Substanz in einer Flüssigkeit.
\mathcal{D}_t	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	Turbulenzbedingter, effektiver Diffusionskoeffizient einer Substanz innerhalb einer turbulenten Strömung.
d	1 m	Rührerdurchmesser; <u>außerdem</u> : Partikel-, auch <i>Blasendurchmesser</i> .
d_{10}	1 m	Nach <i>Stückzahl</i> gewichteter Mittelwert des Partikel- oder Blasendurchmessers.
d_{32}	1 m	SAUTERdurchmesser, Verhältnis aus summiertem Volumen und summierter Oberfläche einer Anzahl Partikeln oder Blasen (vgl. Abschnitt 2.2.3.1, auf Seite 17).
$d_{\text{Bl.}}$	1 m	Blasendurchmesser.
d_{max}	1 m	Maximaler stabiler Blasendurchmesser (in einem turbulenten Strömungsfeld der umgebenden, kontinuierlichen Flüssigkeit).
d_p	1 m	Partikeldurchmesser.
$E(w)$	$1 \frac{\text{m}^3}{\text{s}^2} = \frac{[k']}{[w]}$	Wellenzahl- (w)-abhängige Spektralfunktion des Turbulenz-Energie-Spektrums; $E(w) = \frac{dk'}{dw} \Big _w$.
F	$1 \text{ kg} \frac{\text{m}}{\text{s}^2} = 1 \text{ N}$	Kraft, allgemein.
F_A	$1 \text{ kg} \frac{\text{m}}{\text{s}^2} = 1 \text{ N}$	Auftriebskraft, die z.B. auf eine Blase wirkt.
F_C	$1 \text{ kg} \frac{\text{m}}{\text{s}^2} = 1 \text{ N}$	CORIOLISKraft auf einem radial bewegte Masse in einem rotierenden Bezugssystem, $F_C = m \cdot \omega \cdot u_r$.
F_w	$1 \text{ kg} \frac{\text{m}}{\text{s}^2} = 1 \text{ N}$	Widerstandskraft, z.B. bei der Umströmung eines Körpers.
F_Z	$1 \text{ kg} \frac{\text{m}}{\text{s}^2} = 1 \text{ N}$	Zentrifugalkraft in einem rotierenden Bezugssystem, $F_Z = m \cdot \omega^2 \cdot r$.
f	1	unabhängiger Exponent, z.B. an einer dimensionslosen Gruppe; <u>außerdem</u> :
	$1 \text{ s}^{-1} = 1 \text{ Hz}$	Frequenz turbulenzbedingter Geschwindigkeitsschwankungen (spektral verteilte Größe; vgl. Abschnitt 4.1.1.1, auf Seite 55).
f_μ	1	Dämpfungsfaktor, zur Anwendung auf die – z.B. nach dem k, ϵ -Modell berechnete – Wirbelviskosität, für die Modellierung des wandnahen Übergangs von Turbulenz zur laminaren Grenzschicht.
G	1	Dimensionslose Gruppe / Kennzahl.
g	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	Erdbeschleunigung; SI: $g \stackrel{!}{=} 9,80665 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^2}$ ¹ .
I	1	Fluoreszenzintensität (relativ).
I_0	1	Fluoreszenzintensität (relativ) eines sauerstoffempfindlichen Farbstoffes bei gänzlicher <i>Abwesenheit</i> von Sauerstoff.

¹Ortsunabhängige, einheitliche Definition im Rahmen des *Système International des Unités* (SI).

Größe	Einheit	Bedeutung
i	1	Einheitsvektor in X-Richtung eines kartesischen Koordinatensystems, $\mathbf{i} = (1; 0; 0)$.
I_f	1	Falschlichtanteil bei der Fluoreszenzmessung.
J	$1 \frac{\text{kg}}{\text{s}}$	Massenstrom, allgemein.
J_s	$1 \frac{\text{kg}}{\text{s}}$	Massenstrom einer chemischen Komponente s in einem Fluid durch Diffusion oder durch konvektiven Transport.
J_{x_ξ}	$1 \frac{\text{kg}}{\text{s}}$	Massenstrom (s.o., J_s) an der Stelle $x = x_\xi$ (ξ : Laufindex).
j	1	Einheitsvektor in Y-Richtung eines kartesischen Koordinatensystems, $\mathbf{j} = (0; 1; 0)$.
j	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^2 \cdot \text{s}}$	Massenstromdichte (flächenbezogen).
j_{x_ξ}	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^2 \cdot \text{s}}$	Massenstromdichte (s.o., j) an der Stelle $x = x_\xi$ (ξ : Laufindex).
K_{He}	$1 \frac{\text{N}}{\text{m}^2} = 1 \text{ Pa}$	HENRYkoeffizient; Proportionalitätsfaktor zwischen dem Molenbruch (Stoffmengenanteil) eines gelösten Gases in einer Flüssigkeit und dessen Partialdruck im angrenzenden Gasraum im Gleichgewichtszustand.
K_M	$1 [c] = \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Konzentration halbmaximaler Umsatzrate bei der Beschreibung einer biochemischen Reaktions- bzw. Aufnahme-/Verbrauchskinetik nach MONOD (Zellkultivierung) bzw. MICHAELIS-MENTEN (Enzymkinetik).
K_{SV}	$1 [p_{\text{O}_2}]^{-1}$	STERN-VOLMER-Konstante für die Fluoreszenzlöschung durch bestimmte chemische Verbindungen (z.B. Sauerstoff) an speziellen Farbstoffen.
k	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^2} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg}}$	Spezifische, d.h. auf die Fluid <i>masse</i> bezogene, kinetische Energie eines strömenden Fluides; häufig vereinfachte Schreibweise für die folgende Größe:
k'	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^2} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg}}$	Spezifische, d.h. auf die Fluid <i>masse</i> bezogene, kinetische <i>Turbulenz</i> energie; das ist die Energie in der turbulenzbedingten stochastischen Bewegung, die der Hauptbewegung einer turbulenten Strömung überlagert ist.
k	1	Einheitsvektor in Z-Richtung eines kartesischen Koordinatensystems, $\mathbf{k} = (0; 0; 1)$.
k_v	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m} \cdot \text{s}^2} = 1 \frac{\text{J}}{\text{m}^3}$	<i>Volumen</i> bezogene kinetische Energie eines strömenden Fluides.
L	1 m	Charakteristische Länge eines mechanischen Turbulenzerzeugers.
l	1 m	(Charakteristische) Länge, allgemein.
ℓ	1 m	PRANDTLsche Mischungslänge; mittlere freie Weglänge eines (durchschnittlichen) Turbulenzwirbels in einer turbulenten Strömung.
ℓ_μ, ℓ_ϵ	1 m	Spezielle Turbulenzlängenmaße im Ein-Gleichungs-Turbulenzmodell nach WOLFSTEIN.
$\widetilde{M}_{\text{X}_y\text{Z}}$	$1 \frac{\text{kg}}{\text{kmol}}$	Molmasse der chemischen Verbindung X_yZ .
m	1 kg	Masse, allgemein.
\dot{m}	$1 \frac{\text{kg}}{\text{s}}$	Massenstrom, zeitliche Massenänderung.
m_{Bl}	1 kg	Masse einer einzelnen Gasblase.

Größe	Einheit	Bedeutung
m_g	1 kg	Gasmasse, z.B. der Gesamtheit aller Gasblasen in einem numerischen Bilanz-Kontrollvolumen.
\dot{m}_g	1 $\frac{\text{kg}}{\text{s}}$	Gasmassenstrom, durch den Begaser (-ring) oder für eine einzelne Trajektorie.
N_g	1	Dimensionslose <i>Begasungskennzahl</i> , s. Abschnitt C.3, auf Seite 192.
n	1 s ⁻¹	Rührerdrehzahl; die Einheit bezieht sich auf ganze <i>Umdrehungen</i> ; außerdem: Anzahl der Einzelwerte für eine Mittelwertbildung.
n_b	1	Ein bestimmte Anzahl von Blasen, im Rahmen einer gewichteten Mittelung.
$O_{Bl.}$	1 m ²	Oberfläche einer einzelnen Gasblase.
OTR	1 $\frac{\text{kg}}{\text{m}^3 \cdot \text{s}}$	Volumenbezogene Sauerstoffübertragungsrate (engl. “ <i>oxygen transfer rate</i> ”).
P	1 $\text{kg} \frac{\text{m}^2}{\text{s}^3} = 1 \text{ W}$	Leistung (Energie je Zeit), allgemein; speziell: Rührerleistungseintrag
P_0	1 $\text{kg} \frac{\text{m}^2}{\text{s}^3} = 1 \text{ W}$	Rührerleistungseintrag im unbegasten Betrieb.
P_g	1 $\text{kg} \frac{\text{m}^2}{\text{s}^3} = 1 \text{ W}$	Rührerleistungseintrag beim Reaktorbetrieb mit Blasenbegasung.
P_k	1 $\frac{\text{m}^2}{\text{s}^3}$	Spezifische Produktion kinetischer Turbulenzenergie im k, ϵ -Turbulenzmodell; vgl. Abschnitt 4.2.3, auf Seite 70.
p	1 $\frac{\text{N}}{\text{m}^2} = 1 \text{ Pa}$	Druck, allgemein; auch <i>Partialdruck</i> .
p_{O_2}	1 % LS	Partialdruck gelösten Sauerstoffs in wässriger Lösung, bezogen auf Luftsättigung (LS).
p_v	1 $\frac{\text{kg}}{\text{m} \cdot \text{s}^2} = 1 \text{ Pa}$	Staudruck eines strömenden Fluides; identisch mit der <i>volumenbezogenen</i> kinetischen Energie.
pH	1 1	Säuregrad einer wässrigen Lösung, negativer dekadischer Logarithmus der Hydronium- (H_3O^{+} -) -ionenkonzentration (vgl. Eintrag „p“ in Abschnitt C.6, auf Seite 195).
q_{Ξ}	1 $\frac{\text{kg}}{\text{m}^3 \cdot \text{s}}$	Volumenbezogene („spezifische“) Verbrauchsrate einer (bio-) chemischen Reaktion bezüglich eines (beliebig ausgewählten) Reaktanden Ξ .
R	1 $\frac{\text{J}}{\text{kmol} \cdot \text{K}}$	Allgemeine Gaskonstante; $R = 8314,41 \frac{\text{J}}{\text{kmol} \cdot \text{K}}$.
\Re	1 $\frac{\text{J}}{\text{kg} \cdot \text{K}}$	Spezielle Gaskonstante; $R = \Re \cdot \widetilde{M}$.
r	1 m	Radius, z.B. einer Blase.
S	1 $\frac{\text{kg}}{\text{s}}$	Massenquellterm.
s	1 m	Länge, Wegstrecke (z.B. als <i>Zirkulationsweg</i>); vgl. auch das folgende:
s_v	1 $\frac{\text{kg}}{\text{m}^3 \cdot \text{s}}$	<i>Volumenbezogener</i> Massenquellterm, $s_v = \frac{S}{V}$; auch volumenbezogene Quellterme anderer Größen.
T	1 K	Absolute, thermodynamische Temperatur.
t	1 s	Zeit, allgemein.
t_c	1 s	Zirkulationszeit (s. Abschnitt 2.1.4, auf Seite 15).

Größe	Einheit	Bedeutung
t_e	1 s	Expositionszeit einzelner Flüssigkeitselemente an der Phasengrenze (Oberflächenerneuerungstheorie für den Stoffaustausch an Phasengrenzflächen, vgl. Abschnitt 2.3.2.2, auf Seite 24).
t_m	1 s	Mischzeit (s. Abschnitt 2.1.3, auf Seite 14).
t_m^g	1 s	Mischzeit bei Reaktorbetrieb mit Blasenbegasung.
u'	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Zeitgemittelter Betrag der stochastischen Geschwindigkeitsschwankungen durch Turbulenz; besonders bezogen auf die (in dieser Größe überwiegenden, großen) Turbulenzwirbel der TAYLORschen Größenordnung (charakteristische Turbulenzlänge Λ).
u^*	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Charakteristische wandnahe Schergeschwindigkeit für die Modellierung turbulenter Strömungen in Wandnähe; $u^* = \sqrt{\tau/\rho}$
u^+	1	Dimensionslose Schergeschwindigkeit entlang einer Wand; $u^+ = \frac{u}{u^*}$.
\mathbf{u}	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Vektorschreibweise einer gerichteten Geschwindigkeit in einem kartesischen Koordinatensystem, $\mathbf{u} = (u_x; u_y; u_z)$, $ \mathbf{u} = u$.
\mathbf{u}'	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Vektorschreibweise für die turbulenzbedingten, stochastischen zeitlichen Schwankungen einer lokalen Strömungsgeschwindigkeit in einer turbulenten Strömung.
u_r	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Geschwindigkeitskomponente in der <i>radialen</i> Richtung eines zylindrischen Koordinatensystems.
V	1 m^3	Volumen, allgemein; auch Reaktor- bzw. Reaktions- (also Flüssigkeits-) -volumen.
\dot{V}	1 $\frac{\text{m}^3}{\text{s}}$	Volumenstrom, allgemein.
$V_{\text{Bl.}}$	1 m^3	Volumen einer einzelnen Blase.
V_g	1 m^3	Disperses Gasvolumen, das in Form von Blasen im flüssigen Reaktorinhalt verteilt ist.
\dot{V}_g	1 $\frac{\text{m}^3}{\text{s}}$	Gasvolumenstrom, der durch den Begaser (-ring) ständig eingebracht wird.
\dot{V}_R	1 $\frac{\text{m}^3}{\text{s}}$	(Flüssigkeits-) Volumenstrom durch das vom Rührer überstrichene Gebiet, Rührerpumpleistung.
\dot{V}_R^g	1 $\frac{\text{m}^3}{\text{s}}$	Dieselbe Größe, für den Fall des Reaktorbetriebes mit Blasenbegasung.
v	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Geschwindigkeit, allgemein.
v'	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Turbulenzbedingte (mittlere) Geschwindigkeitsschwankung; das ist die mittlere Geschwindigkeit der turbulenzbedingten stochastischen Bewegung, die der Hauptbewegung einer turbulenten Strömung überlagert ist.
v_0	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Geschwindigkeit der kleinsten Turbulenzwirbel (an der Grenze des Turbulenzspektrums zur viskosen Energiedissipation; vgl. λ_0).
$v_{\text{RSp.}}$	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Rührerspitzen Geschwindigkeit (tangentielle Geschwindigkeit der Rührerblatt-Außenkante).
v_Λ	1 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	Charakteristische Geschwindigkeit der großen, TAYLORschen Turbulenzwirbel.

Größe	Einheit	Bedeutung
v_λ	$1 \frac{\text{m}}{\text{s}}$	(Charakteristische) Geschwindigkeit der Turbulenzwirbel mit der charakteristischen Turbulenzlänge (Wirbelgröße, Wellenlänge) λ .
W	$1 \text{ kg} \frac{\text{m}^2}{\text{s}^2} = 1 \text{ J}$	Arbeit (Energie), allgemein.
w	1 m^{-1}	Wellenzahl, Kehrwert der Wellenlänge (z.B. bei der Diskussion des Turbulenzspektrums).
w_{g0}	$1 \frac{\text{m}}{\text{s}}$	Gasleerrohrgeschwindigkeit (Quotient aus dem Gasvolumenstrom \dot{V}_g und einem horizontalen freien Apparatequerschnitt A).
x	1 m	Ortskoordinate, z.B. quer zu einer Scherströmung und somit entlang dem Geschwindigkeitsgradienten.
$x_{i,j}$	1 m	Ortskoordinaten in senkrecht aufeinander stehenden Raumrichtungen.
y	1 m	Ortskoordinate <i>normal</i> (senkrecht) zu einer Wand.
y^+	1	Dimensionslose Ortskoordinate <i>normal</i> zur Wand; $y^+ = y \cdot \frac{u^*}{\nu}$.
y_g	1	Stoffmengenanteil (Molenbruch) einer Substanz in einem Gasgemisch.

C.2 Griechische Buchstaben

Größe	Einheit	Bedeutung
α	$1 \frac{\text{kg}}{\text{s}^3 \cdot \text{K}} = 1 \frac{\text{W}}{\text{m}^2 \cdot \text{K}}$	Wärmeübergangskoeffizient (an einer Grenzfläche).
β	$1 \frac{\text{m}}{\text{s}}$	Stoffaustauschkoeffizient, allgemein.
β_l	$1 \frac{\text{m}}{\text{s}}$	Linearer Stoffaustauschkoeffizient; der Index l markiert die Annahme, daß der gesamte Stofftransportwiderstand auf der Flüssigkeitsseite der Phasengrenze lokalisiert ist.
β_{la}	1 s^{-1}	Volumetrischer Stoffaustauschkoeffizient.
Γ_Φ	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	Diffusions- / Dispersionskoeffizient in einer NAVIER-STOKES-Gleichung für eine beliebige Erhaltungsgröße Φ .
$\dot{\gamma}$	1 s^{-1}	Schergradient, Schergefälle.
$\vec{\gamma}$	1 s^{-1}	Alternative Tensorschreibweise für die Summe aller lokalen Schergradienten in einer vollständig dreidimensionalen Strömung.
$\Delta\xi$	$1 [\xi]$	Differenz zweier unterschiedlicher Werte der (beliebigen) Größe ξ .
δ	1 m	(Flüssigkeitsseitige) Grenzfilmdicke an einer Phasengrenze.
δ_{ij}	1	„KRONECKERdelta“, analoger <i>Tensor</i> zur Einheitsmatrix (bzw. zu den Einheitsvektoren $\mathbf{i}, \mathbf{j}, \mathbf{k}$).
ϵ	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^3} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg} \cdot \text{s}}$	Spezifische, d.h. auf die Fluid <i>masse</i> bezogene Energiedissipationsrate in den kleinsten Turbulenzwirbeln; gleichzeitig (massenbezogener) Energiefluß durch die Turbulenzwirbelklassen-Kaskade.
$\tilde{\epsilon}$	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^3} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg} \cdot \text{s}}$	<i>Isotroper</i> Anteil der spezifischen Turbulenzenergie-Dissipationsrate ϵ .
ε	1	Relativer Volumenanteil einer Phase, allgemein.
ε_g	1	Relativer Volumenanteil der (dispersen) Gasphase.
ζ	$1 \frac{\text{kg} \cdot \text{m}}{\text{s}^3 \cdot \text{K}} = 1 \frac{\text{W}}{\text{m} \cdot \text{K}}$	Wärmeleitfähigkeit; die Einheit erklärt sich aus dem Quotienten von Wärmestromdichte (in $\frac{\text{W}}{\text{m}^2}$) und Temperaturgradient (in $\frac{\text{K}}{\text{m}}$).

Größe	Einheit	Bedeutung
Θ	1	Mischzeitcharakteristik, dimensionslose Mischzeit; siehe Abschnitt C.3, auf Seite 192.
ϑ_L	1 s	LAGRANGESche Zeitskala; Charakteristikum für die mittlere Lebensdauer von Turbulenzwirbeln.
Λ	1 m	Charakteristisches Turbulenz-Längenmaß nach TAYLOR, gültig für große Turbulenzwirbel (am „Beginn“ der Turbulenz-Wirbel-Kaskade).
λ	1 m	Charakteristische Turbulenzlänge (Wirbeldurchmesser) einer beliebigen Klasse von Turbulenzwirbeln; Wellenlänge der entsprechenden Klasse turbulenzbedingter Geschwindigkeitsschwankungen.
λ_0	1 m	KOLMOGOROVlänge; charakteristische Turbulenzlänge (Wirbeldurchmesser) der kleinsten Turbulenzwirbel an der Grenze des Turbulenzspektrums zur viskosen Energiedissipation; somit auch <i>Wellenlänge</i> der kleinsten Turbulenz, „wellen“ im Turbulenzspektrum.
μ	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m} \cdot \text{s}} = 1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$	dynamische [molekulare, laminare] Viskosität.
μ_t	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m} \cdot \text{s}} = 1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$	Turbulenzbedingte, apparente Viskosität, die nach BOUSSINESQ- und PRANDTL-Hypothese in turbulenter Strömung zur laminaren, physikalischen (dynamischen) Viskosität hinzukommt (vgl. Abschnitt 4.2.2.3, auf Seite 68).
ν	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	kinematische Viskosität: $\nu = \frac{\mu}{\varrho}$; es ergibt sich dieselbe Einheit wie für den Diffusionskoeffizienten \mathcal{D} (vgl. hierzu Tabelle C.3 auf Seite 192).
ν_t	$1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	Turbulenzbedingte, apparente <i>kinematische</i> Viskosität, die ... – vgl. μ_t !
ξ	1	Platzhalter, Laufindex.
π	1	Kreiskonstante; $\pi = 3,14159265358979 \dots$
ϖ	1	GAUSSverteilte Zufallszahl.
ϱ	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Dichte („spezifisches Gewicht“, volumenbezogene Masse).
ϱ_l	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Flüssigkeitsdichte.
ϱ_p	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Dichte der dispersen Phase (Partikeln).
σ	$1 \frac{\text{kg}}{\text{s}^2} = 1 \frac{\text{N}}{\text{m}}$	Grenzflächenspannung zwischen zwei (nicht miteinander mischbaren) Phasen; kann als <i>flächenbezogene Arbeit</i> aufgefaßt werden (notwendige Arbeit zur Schaffung neuer Grenzfläche, $\frac{dW}{dA}$), für die Einheit ergibt sich dann $[\sigma] = 1 \frac{\text{J}}{\text{m}^2}$.
ς_Φ	1	Dimensionsloses Verhältnis aus der <i>turbulenten, kinematischen</i> Viskosität ν_t und den Diffusionskoeffizienten Γ_Φ für andere Erhaltungsgrößen Φ , für die analoge NAVIER-STOKES-Gleichungen aufgestellt werden können.
τ	$1 \frac{\text{N}}{\text{m}^2} = 1 \text{ Pa}$ 1 s	Schubspannung, Wandschubspannung; <u>außerdem</u> : Zeit (allgemein), Verweilzeit.
τ_0	1 s	Charakteristisches Zeitmaß der kleinsten und schnellsten Geschwindigkeitsschwankungen im Turbulenzspektrum; KOLMOGOROV-Zeitmaß.

Größe	Einheit	Bedeutung
τ_g	1 s	Verweilzeit der dispersen Gasphase, also Gasblasen, im flüssigen Reaktorinhalt.
τ_{ij}	$1 \frac{\text{N}}{\text{m}^2} = 1 \text{ Pa}$	Schubspannungstensor in einer beliebigen dreidimensionalen Strömung.
τ'_{ij}	$1 \frac{\text{N}}{\text{m}^2} = 1 \text{ Pa}$	REYNOLDSScher Schubspannungstensor; zusätzliche Schubspannungen in einer turbulenzbehafteten Strömung; vgl. Abschnitt 4.2.2.1, auf Seite 67.
Φ, ϕ	1 $[\Phi]$, 1 $[\phi]$	Platzhalter für eine beliebige (Erhaltungs-) Größe.
Ψ	1 $\text{kg} \frac{\text{m}}{\text{s}}$	Impuls, Produkt aus Masse und Geschwindigkeit (Erhaltungsgröße).
$\dot{\psi}$	$1 \frac{\text{kg}}{\text{m} \cdot \text{s}^2} = 1 \text{ Pa}$	Impulsstromdichte (Impuls je Zeit und Querschnittsfläche); identisch mit einer Schubspannung, also einer (tangential an einer, auch fiktiven, Grenze wirkenden) Kraft je Fläche.

C.3 Dimensionslose Kennzahlen

Tabelle C.3 auf dieser Seite gibt eine systematische Übersicht der wichtigsten Kennzahlen.

Zahl	Definition	Name, ggf. Erläuterung
Bo	$= \frac{v \cdot l}{\mathcal{D}}$	BODENSTEINZahl; Produkt aus Re und Sc; Verhältnis aus dem Stofftransport durch Konvektion und demjenigen durch Diffusion ² .
Fa	$= \frac{g \cdot l}{v^2}$	FANNINGZahl; Kehrwert der bekannteren, folgenden Kennzahl:
Fr	$= \frac{v^2}{g \cdot l}$	FROUDEZahl; Verhältnis aus Trägheitskräften (impulsbehaftete Bewegung) und Gewichtskräften (Einfluß der Erdbeschleunigung).
Le	$= \frac{a}{\mathcal{D}}$	LEWISZahl; Verhältnis aus Wärmeleitung und Stoffdiffusion.

²Das analoge Größenverhältnis für den Wärmetransport ist die PÉCLETZahl Pe.

Tabelle C.3: Systematische Übersicht der wichtigsten Kennzahlen.

	Transport von ...		
	Stoff	Wärme	Impuls
$\left(\frac{\text{Konvektion}}{\text{Diffusion/Leitung}} \right)$	Bo = $\frac{v \cdot l}{\mathcal{D}}$	Pe = $\frac{v \cdot l}{a}$	Re = $\frac{v \cdot l}{\nu}$
$\left(\frac{\text{Viskosität}^*}{\text{Diffusion/Leitung}} \right)$	Sc = $\frac{\nu}{\mathcal{D}}$	Pr = $\frac{\nu}{a}$	Le = $\frac{a}{\mathcal{D}}$
$\left(\frac{\text{Austausch/Übergang}}{\text{Diffusion/Leitung}} \right)$	Sh = $\frac{\beta \cdot l}{\mathcal{D}}$	Nu = $\frac{\alpha \cdot l}{\zeta}$	a = $\frac{\zeta}{\varrho \cdot c_p}$

*Viskosität entspricht diffusivem Impulstransport. Die Kennzahlen der mittleren Zeile sind (dimensionslose) Stoffeigenschaften. (Sie können allerdings durch Turbulenz apparent verändert werden [Intensivierung aller diffusiven Transportphänomene].) Die Kennzahlen Sc und Pr ergeben sich aus den darüberstehenden Zahlen (Bo und Pe), indem die letzteren durch die REYNOLDSZahl Re dividiert werden.

Zahl	Definition	Name, ggf. Erläuterung
N_g	$= \frac{\dot{V}_g}{n \cdot d^3}$	Begasungskennzahl; Verhältnis des Gasvolumenstromes vom Begaser zum Flüssigkeitsvolumenstrom, der vom Rührer gepumpt wird.
N_{Pu}	$= \frac{\dot{V}_R}{d^3 \cdot n}$	Pumpkennzahl, dimensionslose Rührerpumpleistung; s. Abschnitt 2.1.1, auf Seite 13.
Ne	$= \frac{P}{\rho \cdot n^3 \cdot d^5}$	NEWTONzahl, (Rührer-) Leistungskennzahl; s. Abschnitt 2.1.2, auf Seite 13.
Nu	$= \frac{\alpha \cdot l}{\zeta}$	NUSSELTzahl; Verhältnis aus Wärmeübergang (an einer Grenzfläche) und Wärmeleitung ³ .
Pe	$= \frac{v \cdot l \cdot \rho \cdot c_p}{\zeta} = \frac{v \cdot l}{a}$	PÉCLETzahl; Produkt aus Re und Pr; Verhältnis aus konvektivem Wärmetransport und Wärmeleitung ⁴ .
Pr	$= \frac{\mu \cdot c_p}{\zeta} = \frac{\nu}{a}$	PRANDTLzahl; Verhältnis aus diffusivem Impulstransport (Viskosität) zu diffusivem Wärmetransport (durch Wärmeleitung) ⁵ .
Pr_t	$= \frac{\mu_t \cdot c_p}{\zeta}$	Apparente SCHMIDTzahl in voll turbulenter Strömung.
Re	$= \frac{v \cdot l \cdot \rho}{\mu}$	REYNOLDSzahl, allgemein; Verhältnis aus Trägheits- und Zähigkeitskräften.
Re_p	$= \frac{v \cdot d_p}{\nu}$	Partikel-REYNOLDSzahl für die Umströmung einer Partikel durch ein Fluid.
Re_R	$= \frac{n \cdot d^2 \cdot \rho}{\mu}$	Rührer-REYNOLDSzahl, ergibt sich aus der Definition für die Rührerspitzengeschwindigkeit $v_{RSp.} = 2\pi \cdot n \cdot d$ ⁶ .
Re_ϵ	$= \frac{k^2}{\nu \cdot \epsilon}$	REYNOLDSzahl zur Charakterisierung einer Strömung aus den Bilanzgrößen (k und ϵ) des k, ϵ -Turbulenzmodells.
Re_λ	$= \frac{\lambda \cdot v_\lambda}{\nu}$	REYNOLDSzahl für die Turbulenzwirbel der charakteristischen Turbulenzlänge (Wirbelgröße, Wellenlänge) λ und der charakteristischen Geschwindigkeit v_λ .
Sc	$= \frac{\nu}{D} = \frac{\mu}{D \cdot \rho}$	SCHMIDTzahl; Verhältnis aus Impulstransport (diffusiv, also quer zur Strömung, entlang einem Schergefälle) und Stofftransport (ebenfalls diffusiv, entlang einem treibenden Konzentrationsgradienten) ⁷ .
Sc_t	$= \frac{\mu_t}{\rho \cdot D_t} = 0,7$	Apparente SCHMIDTzahl in voll turbulenter Strömung; der Zahlenwert ist experimentell gewonnen und hat weitreichende Gültigkeit.
Sh	$= \frac{\beta_l \cdot l}{D}$	SHERWOODzahl; Verhältnis aus Stoffübergang (durch eine Phasengrenze) zu Stoffdurchgang (Diffusion durch ein kontinuierliches Medium) ⁸ .

³Das analoge Größenverhältnis für den Stofftransport ist die SHERWOODzahl Sh. Vergleiche auch Fußnote 8.

⁴Das analoge Größenverhältnis für den Stofftransport ist die BODENSTEINzahl Bo.

⁵Das analoge Größenverhältnis für den Stofftransport ist die SCHMIDTzahl Sc.

⁶Der konstante Faktor 2π wird bei der Bildung der Kennzahl bewußt weggelassen.

⁷Das analoge Größenverhältnis für den Wärmetransport ist die PRANDTLzahl Pr.

⁸Zahlenwerte für diese Kennzahl sollten nur dann miteinander verglichen werden, wenn die korrekte und konsistente Wahl der charakteristischen Länge l gesichert ist. Das analoge Größenverhältnis für den Wärmetransport ist

Zahl	Definition	Name, ggf. Erläuterung
We	$= \frac{\rho \cdot v^2 \cdot d}{\sigma}$	WEBERzahl; Verhältnis von Trägheits- (Bewegungs-) und Oberflächenspannungskräften.
We _{krit.}	$= \frac{\rho \cdot \epsilon^{\frac{2}{3}} \cdot d_{\max}^{\frac{5}{3}}}{\sigma}$	Kritische, turbulenzbezogene Weberzahl, bei deren Überschreitung Blasenzerteilung eintritt.
Θ	$= t_m \cdot n$	Mischzeitcharakteristik, dimensionslose Mischzeit; vgl. Abschnitt 2.1.3 auf Seite 15. Diese Größe ist die Anzahl der Rührerumdrehungen, die zum Erreichen des Homogenitätskriteriums in der Mischzeitbestimmung erforderlich sind.

C.4 Indizes

Abk.	Bedeutung
0	<ul style="list-style-type: none"> • Bei Reaktorbetrieb <i>ohne</i> Blasenbegasung. • Bezogen auf die kleinsten Turbulenzwirbel (energiedissipierender Turbulenzbereich nach KOLMOGOROV). • Zu <i>Beginn</i> (z.B. der Lebensdauer einer Blase). • Siehe unter $g0$.
10	Stückzahlgewichteter Mittelwert; vgl. oben, d_{10} .
32	Mittelwert nach SAUTER; vgl. oben, d_{32} .
A	Auftriebsbedingt.
C	CORIOLIS-; z.B. F_C , CORIOLISKraft.
c	Zirkulation (z.B. -zeit).
e	Exposition (z.B. -zeit).
g	Bezogen auf die (disperse) Gasphase; als Hochindex sowie am Symbol P : Bezugnehmend auf den Reaktorbetrieb mit Blasenbegasung.
$g0$	Im Symbol w_{g0} : Spezifikation einer Gasgeschwindigkeit als <i>Lehrrohrgeschwindigkeit</i> .
He	Verweis auf das HENRYsche Gesetz (vgl. Abschnitt 2.3, auf Seite 21).
i	Unabhängiger Laufindex, besonders zur Indizierung von Raumrichtungen (Vektor- und Tensornotation).
j	Unabhängiger Laufindex, besonders zur Indizierung von Raumrichtungen (Vektor- und Tensornotation).
krit.	„Kritisch“, Grenzwert, bei dessen Über- oder Unterschreitung z.B. ein bestimmtes Ereignis eintritt; z.B.: kritische Weberzahl We _{krit.} für die turbulenzbedingte Blasenzerteilung.
l	Bezogen auf die Flüssigkeit, oder gültig für/in der Flüssigkeit; zu β_l s. dort; <u>außerdem</u> : Unabhängiger Laufindex, wie i und j .
L	LAGRANGE.
m	Vermischung (z.B. Mischzeit).
max	Maximal, z.B. maximaler stabiler (Blasen-) Durchmesser d_{\max} .
p	Bei konstantem Druck.
R	Rührer (z.B. bei der Rührerpumpleistung \dot{V}_R).

die NUSSELTzahl Nu.

Abk.	Bedeutung
RSp.	Rührerblatt-Außenkante (z.B. in $v_{\text{RSp.}}$ für die sog. Rührerspitzen­geschwindigkeit).
r	In <i>radialer</i> Richtung eines zylindrischen Koordinatensystems.
t	Turbulenzbedingt; in einer turbulenzbehafteten Strömung.
v	Bedingt durch Bewegung, „kinetisch“ (z.B. Staudruck p_v).
w	Widerstand, z.B. bei Körperumströmung.
Z	Zentrifugal-, z.B. F_Z , Zentrifugalkraft.
Λ	Bezogen auf die <i>großen</i> Turbulenzwirbel (TAYLORsche Turbulenzklasse).
λ	Bezogen auf eine Turbulenz(wirbel)klasse der charakteristischen Länge (Wirbelgröße, Wellenlänge) λ .
μ	Im Symbol C_μ : (Konstante) zur Bestimmung von μ .
ξ	Platzhalter, Laufindex.

C.5 Sonstige Abkürzungen

Abk.	Bedeutung
...	(Arithmetischer) Mittelwert, zeitgemittelt, volumengemittelt.
ATP	Adenosin-Tri-Phosphat; eine energiereiche chemische Verbindung mit zentraler Bedeutung im Energiestoffwechsel aller lebenden Organismen.
6BSR	Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer, RUSHTON-Turbine.
LS	Luftsättigung (100%-Bezugspunkt für relative Sauerstoffpartialdrücke $[p_{\text{O}_2}]$).
OTR	“ <i>oxygen transfer rate</i> ”, Sauerstoffübertragungsrate; siehe Abschnitt C.1 (Seite 185).
p	(in „pH“:) <i>potentia</i> , negativer dekadischer Logarithmus („H“: der Hydronium- (H_3O^+)-Ionenkonzentration; vgl. Eintrag „pH“ in Abschnitt C.1 auf Seite 188).

Anhang D

Herleitungen

D.1 Rührerleistung

Die mechanische Leistung P einer Bewegung mit der Geschwindigkeit v gegen eine Widerstandskraft F_w ist:

$$P = F_w \cdot v \quad (\text{D.1 - 1})$$

Als charakteristische Geschwindigkeit dient beim Rührer die Rührerspitzen Geschwindigkeit $v_{\text{RSp.}} = \pi \cdot n \cdot d$. Die Widerstandskraft F_w bei der Umströmung eines Körpers ergibt sich aus der Querschnittsfläche A des Körpers und dem Staudruck Δp des Fluides:

$$F_w = C_w \cdot A \cdot \Delta p \quad (\text{D.1 - 2})$$

$$\Delta p = \frac{\rho}{2} \cdot v^2 \quad (\text{D.1 - 3})$$

Nimmt man für die Geschwindigkeit wiederum die Rührerspitzen Geschwindigkeit $v_{\text{RSp.}} = \pi \cdot n \cdot d$, und ersetzt man die Anströmfläche A dimensionsrichtig durch das Quadrat des Rührerdurchmessers d , so ergibt sich:

$$\Delta p = \frac{\rho}{2} \cdot (\pi n d)^2 \quad (\text{D.1 - 4})$$

$$F_w = C_w \cdot \frac{\rho}{2} \cdot (\pi n)^2 d^4 \quad (\text{D.1 - 5})$$

$$P = C_w \cdot \frac{\rho}{2} \cdot (\pi n)^3 d^5 \quad (\text{D.1 - 6})$$

Gleichung [D.1 - 6](#) gibt eine grundsätzliche Formulierung für den mechanischen Leistungseintrag eines Rührers. Der Widerstandsbeiwert C_w und alle Konstanten in Gleichung [D.1 - 6](#) können zur Rührerleistungs- oder NEWTONkennzahl Ne zusammengefaßt werden:

$$P = Ne \cdot \rho \cdot n^3 \cdot d^5 \quad (\text{D.1 - 7})$$

Weitere Einzelheiten zu dieser Kennzahl und Ihren Abhängigkeiten finden sich in Abschnitt [2.1.2](#) auf Seite [13](#)

D.2 Emulsionsherstellung

In Abschnitt [1.4.1](#) (Seite [8](#)) wird die Maßstabsvergrößerung eines Rührreaktors für einen Prozeß diskutiert, der die Bildung einer Emulsion erfordert. Bei der Maßstabsvergrößerung soll zum einen

der volumetrische Leistungseintrag ($\frac{P}{V}$) konstant gehalten werden, und zum anderen die Zirkulationszeit (t_c) der Emulsion (vgl. den zitierten Abschnitt). Neben der Rührerdrehzahl n ist für den Großreaktor, abweichend von vollständiger geometrischer Ähnlichkeit, ein neues Durchmesser-Verhältnis $\frac{d}{D}$ (Rührer zu Rührbehälter) zu ermitteln.

Ein Berechnungsansatz für die Zirkulationszeit ergibt sich aus dem Verhältnis von Reaktorvolumen ($V \sim D^3$) zu Rührerpumpleistung ($\dot{V}_R \sim n \cdot d^3$):

$$t_c \sim \frac{D^3}{n \cdot d^3} \quad (\text{D.2 - 8})$$

Der volumetrische Leistungseintrag ergibt sich, z.B. aus dimensionsanalytischer Betrachtung, gemäß folgender Beziehung (vgl. Abschnitt D.1, auf Seite 197):

$$\frac{P}{V} \sim \frac{n^3 \cdot d^5}{D^3} \quad (\text{D.2 - 9})$$

Diese beiden charakteristischen Größen (t_c und $\frac{P}{V}$) sind bei der Maßstabsvergrößerung konstant zu halten. Wählt man für Labor- und Produktionsreaktor die Indizes 1 und 2, so gelten also folgende Gleichungen (der Ausdruck aus der Beziehung D.2 - 8 für die Zirkulationszeit wurde invertiert):

$$\frac{n_1 \cdot d_1^3}{D_1^3} = \frac{n_2 \cdot d_2^3}{D_2^3} \quad (\text{D.2 - 10})$$

$$\frac{n_1^3 \cdot d_1^5}{D_1^3} = \frac{n_2^3 \cdot d_2^5}{D_2^3} \quad (\text{D.2 - 11})$$

Gleichung D.2 - 10 läßt sich folgendermaßen umstellen:

$$\frac{d_1}{d_2} = \sqrt[3]{\frac{D_1^3 \cdot n_2}{D_2^3 \cdot n_1}} = \frac{D_1}{D_2} \cdot \sqrt[3]{\frac{n_2}{n_1}} \quad (\text{D.2 - 12})$$

Gleichung D.2 - 11 läßt sich in ähnlicher Weise auflösen:

$$\frac{n_1}{n_2} = \sqrt[3]{\frac{D_1^3 \cdot d_2^5}{D_2^3 \cdot d_1^5}} = \frac{D_1}{D_2} \cdot \sqrt[3]{\frac{d_2^5}{d_1^5}} = \frac{D_1}{D_2} \cdot \left(\frac{d_2}{d_1}\right)^{\frac{5}{3}} \quad (\text{D.2 - 13})$$

Der Kehrwert von Gleichung D.2 - 13 wird nun in die Wurzel des rechten Teils von Gleichung D.2 - 12 eingesetzt:

$$\frac{d_1}{d_2} = \frac{D_1}{D_2} \cdot \sqrt[3]{\frac{D_2}{D_1} \cdot \sqrt[3]{\frac{d_1^5}{d_2^5}}} = \left(\frac{D_1}{D_2}\right)^{\frac{2}{3}} \cdot \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^{\frac{5}{9}} \quad (\text{D.2 - 14})$$

$$\Leftrightarrow \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^{\frac{4}{9}} = \left(\frac{D_1}{D_2}\right)^{\frac{2}{3}} \quad \left| \cdot \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^{\frac{5}{9}} \right. \quad (\text{D.2 - 15})$$

$$\Leftrightarrow \frac{d_1}{d_2} = \left(\frac{D_1}{D_2}\right)^{\frac{3}{2}} \quad (\text{D.2 - 16})$$

Der Kehrwert dieses Ergebnisses läßt sich schließlich in die Klammer des rechten Teils von Gleichung D.2 - 13 einsetzen:

$$\frac{n_1}{n_2} = \frac{D_1}{D_2} \cdot \left(\frac{D_1}{D_2}\right)^{-\frac{3}{2} \cdot \frac{5}{3}} \quad (\text{D.2 - 17})$$

$$\Leftrightarrow \frac{n_1}{n_2} = \left(\frac{D_1}{D_2}\right)^{-\frac{3}{2}} \quad (\text{D.2 - 18})$$

Gleichungen D.2 - 16 und D.2 - 18 beschreiben, wie Rührerdurchmesser d und -drehzahl n bei der Maßstabsvergrößerung zu wählen sind, damit die oben und in Abschnitt 1.4.1 (Seite 8) festgelegten Kriterien eingehalten werden.

D.3 Begasung und *scale-up*

Am Ende von Abschnitt 2.3.3.2 (Seite 27) wurde – unter Berufung auf NIENOW (1990) [221] – behauptet, daß sich bei einer geometrisch ähnlichen Maßstabsvergrößerung mit konstanter volumetrischer Begasungsrate $\frac{\dot{V}_g}{V}$ die Begasungskennzahl N_g verändert. Dies soll im folgenden demonstriert werden.

Die Begasungskennzahl ist folgendermaßen definiert:

$$N_g = \frac{\dot{V}_g}{n \cdot d^3} \quad (\text{D.3 - 19})$$

Die Konstanthaltung der volumetrischen Begasungsrate bedeutet bei einer geometrisch ähnlichen Maßstabsvergrößerung ($d \sim D$) folgendes:

$$\frac{\dot{V}_g}{V} = \text{const.} \Leftrightarrow \dot{V}_g \sim V \sim D^3 \sim d^3 \quad (\text{D.3 - 20})$$

Die letzte Proportionalität ergibt mit der vorangegangenen Gleichung:

$$N_g \sim \frac{1}{n} \quad (\text{D.3 - 21})$$

Die Drehzahl n wird bei der Maßstabsvergrößerung nach bestimmten Regeln eingestellt. Die am weitesten verbreitete Regel für die Maßstabsvergrößerung begaster Bioprozesse ist die Konstanthaltung des Leistungseintrages. Soweit angenommen werden kann, daß der Rührer auch im großen Reaktor voll turbulent arbeitet, ist die NEWTON- oder Leistungskennzahl konstant. Mit Gleichung D.1 - 6 (Seite 197) gilt dann folgendes:

$$\frac{P}{V} \sim \frac{\text{Ne} \cdot \varrho \cdot n^3 \cdot d^5}{d^3} \sim n^3 \cdot d^2 = \text{const.} \quad (\text{D.3 - 22})$$

Die letzte Gleichung in dieser Zeile läßt sich nach n auflösen:

$$n = d^{-\frac{2}{3}} \quad (\text{D.3 - 23})$$

... und das Ergebnis in Gleichung D.3 - 21 einsetzen:

$$N_g \sim d^{\frac{2}{3}} \quad (\text{D.3 - 24})$$

Eine alternative Regel für die Maßstabsvergrößerung ist die Konstanthaltung der Rührerspitzen-geschwindigkeit:

$$n \cdot d = \text{const.} \Leftrightarrow n \sim \frac{1}{d} \quad (\text{D.3 - 25})$$

Dies wird, wie gezeigt, nach n aufgelöst ($n \sim d^{-1}$) und in Gleichung D.3 - 21 eingesetzt. Man erhält:

$$N_g \sim d \quad (\text{D.3 - 26})$$

In beiden Fällen der geometrisch ähnlichen Maßstabsvergrößerung (mit unterschiedlichen Regeln für die Einstellung der Drehzahl) wächst also die Begasungskennzahl des betrachteten Rührers erheblich mit dem Maßstab. Sofern die Grenze zur Überflutung des Rührers als von der REYNOLDSzahl unabhängig angenommen werden kann, reduziert sich der Abstand zwischen einem gewählten Arbeitspunkt und der Überflutungsgrenze.¹ Bei sehr weitreichender Maßstabsvergrößerung (um einen großen Faktor) kann auch der Anwendungsbereich des Rührers als Gasdispergierorgan überschritten werden. Hier kann dann eine Abkehr von der Maßstabsvergrößerung mit strikter geometrischen Ähnlichkeit helfen. Ein größerer Rührer kann mit geringeren Drehzahlen laufen und größere Gasmengen dispergieren. Weiterhin sind hier besondere Rührerbauformen zu beachten, die speziell für eine stabile Gasdispersion entwickelt wurden (vgl. hierzu Abschnitt 2.2.5 auf Seite 20).

D.4 Dynamische $\beta_l a$ -Messung

Bei der Messung des zeitlichen Verlaufs einer Größe mit einer zeitverzögernden Sonde entstehen Meßfehler. Aus den Meßdaten kann aber die Zeitkonstante der Sonde ermittelt werden; ihr Einfluß kann dann bei der Ermittlung der Zeitkonstante für den untersuchten Vorgang eliminiert werden.

Ein bekanntes Beispiel ist die Messung der Gelöstsauerstoffkonzentration in einem begasten Reaktor nach dem Wechsel der Begasung von Stickstoff auf Luft oder umgekehrt. Aus dem zeitlichen Verlauf der Sauerstoffkonzentration im Reaktor kann später der volumetrischen Stoffübergangskoeffizient $\beta_l a$ bestimmt werden.

Das Problem wurde bereits früher bearbeitet [198]; es wurde empfohlen, die Zeitkonstante der Sauerstoffelektrode separat zu bestimmen, so daß die später gewonnenen Meßdaten mit der gefundenen Verzögerungsfunktion „rückgefaltet“ werden können. Da das Signal einer CLARK-Elektrode von vielen Faktoren einschließlich Viskosität und Anströmgeschwindigkeit abhängt, ist die Bestimmung der Zeitkonstante aber selbst ein fehleranfälliges Unterfangen. Im folgenden soll deswegen eine andere Methode gezeigt werden, die die Zeitkonstante τ der Elektrode und den Stoffaustauschkoeffizient $\beta_l a$ gemeinsam aus einem Datensatz ermittelt:

Der Verlauf der Sauerstoffkonzentration im Reaktor gehorcht folgender Differentialgleichung:

$$\frac{dc_l(t)}{dt} = \beta_l a \cdot (c_l^* - c_l(t)) \quad (\text{D.4 - 30})$$

Durch Umstellen erhält man:

$$\frac{1}{\beta_l a} \cdot \dot{c}_l(t) + c_l(t) = c_l^* \quad (\text{D.4 - 31})$$

¹Die Rührerreynoldszahl ändert sich bei der geometrisch ähnlichen Maßstabsvergrößerung mit den genannten Drehzahlregeln ebenfalls:

Es gilt die folgende Definition der REYNOLDSzahl für Rührer:

$$\text{Re}_R = \frac{n \cdot d^2}{\nu} \quad (\text{D.3 - 27})$$

Mit Gleichung D.3 - 25 und Gleichung D.3 - 23 ergeben sich die folgenden Proportionalitäten für Re:

$$\text{Re}_R \sim d^{\frac{4}{3}} \quad (\text{D.3 - 28})$$

... bzw.:

$$\text{Re}_R \sim d \quad (\text{D.3 - 29})$$

Dies zeigt, daß insbesondere bei Laborreaktoren besonders zu fragen ist, ob der Rührer bereits genauso im vollturbulenten Betrieb arbeitet, wie er es im (geometrisch ähnlich maßstabsvergrößerten) Produktionsreaktor tun wird.

Hierauf läßt sich die LAPLACE-Transformation anwenden, und es ergibt sich [260]:

$$F_1(s) = \frac{1}{1 + \frac{s}{\beta_l a}} \quad (\text{D.4 - 32})$$

Die verzögernde Wirkung der Sauerstoffelektrode wird regelungstechnisch als ein Verzögerungsglied erster Ordnung aufgefaßt; für die *angezeigte* Sauerstoffkonzentration $c_{\text{Anz.}}$ ergibt sich eine sehr ähnliche Differentialgleichung:

$$\frac{dc_{\text{Anz.}}(t)}{dt} = \frac{1}{\tau} \cdot (c_l(t) - c_{\text{Anz.}}(t)) \quad (\text{D.4 - 33})$$

Hierfür ergibt die LAPLACE-Transformation:

$$F_2(s) = \frac{1}{1 + s \cdot \tau} \quad (\text{D.4 - 34})$$

Der Wechsel der Begasung von Stickstoff nach Luft bewirkt eine sprunghafte Änderung der Gleichgewichtskonzentration c_l^* .² Dies wird durch die Sprunfunktion $\mathbf{1}(t)$ ausgedrückt. Die Übertragungsfunktion aus der LAPLACE-Transformation hierfür ist $F_3(s) = \frac{1}{s}$.

Durch Multiplizieren dieser drei Übertragungsfunktionen F_i erhalten wir die Gesamtübertragungsfunktion für das Signal der Sauerstoffelektrode beim Begasungswechsel:

$$F(s) = \frac{1}{1 + \frac{s}{\beta_l a}} \cdot \frac{1}{1 + s \cdot \tau} \cdot \frac{1}{s} \quad (\text{D.4 - 35})$$

Die inverse LAPLACE-Transformation ergibt [321]:

$$c_{\text{Anz.}}(t) = -\frac{\beta_l a \cdot \tau \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} - e^{-\beta_l a \cdot t} - \beta_l a \cdot \tau + 1}{\beta_l a \cdot \tau - 1} \cdot \mathbf{1}(t) \quad (\text{D.4 - 36})$$

Für einen beliebigen Konzentrationssprung zum Zeitpunkt $t = 0$, der die Gleichgewichtskonzentration c_l^* von $c_{l,0}$ auf $c_{l,1}$ wechseln läßt, gilt:

$$c_{\text{Anz.}}(t) = c_{l,0} - \frac{\beta_l a \cdot \tau \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} - e^{-\beta_l a \cdot t} - \beta_l a \cdot \tau + 1}{\beta_l a \cdot \tau - 1} \cdot \mathbf{1}(t) \cdot (c_{l,1} - c_{l,0}) \quad (\text{D.4 - 37})$$

Mit dieser Funktion wurden die Meßdaten in Abbildung 6.10 (auf Seite 141, s. Abschnitt 6.8.4) angenähert und die Werte für $\beta_l a$ und τ (die Zeitkonstante der Elektrode) bestimmt.

²Verweilzeitverteilung und Vermischungsverhalten der Gasphase werden vernachlässigt; beide haben in einfachen Laborreaktoren Zeitkonstanten, die an dieser Stelle vernachlässigt werden können (klein gegenüber $\beta_l a$).

Anhang E

Ergänzungen

Dieses Kapitel enthält Anmerkungen und Ergänzungen zu einigen Teilen dieser Arbeit. Sie sollen demjenigen Leser dienen, der vertieftes Interesse an bestimmten Details der ausgeführten Modellentwicklung und Experimente oder daraus abgeleiteter Überlegungen und Erkenntnisse hat.

E.1 Messung des Stoffübergangs

Für den volumetrischen Stoffaustauschkoeffizienten wurden zahllose Meßmethoden entwickelt und veröffentlicht. Sie zusammenzufassen soll nicht Aufgabe dieser Arbeit sein. Entsprechende Übersichten finden sich z.B. in [178, 250, 263, 277, 282].

E.1.1 Meßprinzipien

Gleichung 2.3 - 12 (Seite 22) legt zwei prinzipielle Vorgehensweisen nahe, nämlich eine *zeitabhängige* und eine *stationäre*. In beiden Fällen stellt man einen treibenden Konzentrationsgradienten her.

E.1.1.1 Instationäre Verfahren

Bei der zeitabhängigen Methode beobachtet man, wie sich durch den Stoffübergang die Konzentration c_l in der freien Flüssigkeit verändert. Durch diese Änderung ändert sich auch permanent der treibende Konzentrationsunterschied; die Konzentration c_l nähert sich infinitesimal an c_l^* an. Die Zeitkonstante dieses asymptotischen Ausgleichsprozesses (Relaxationskonstante) ist identisch mit dem βla . Bereits 1967 wurde diese Methode zur Anwendung in Fermentationen beschrieben [26].

Neben dem einfachen Wechsel der Gaszufuhr zwischen Stickstoff und Luft wurde auch die Methode beschrieben, gleichzeitig Gaszufuhr und Umwälzung in Gang zu setzen, nachdem die Kultur vorher ungerührt und unbegast anaerob geworden ist.

In großen Reaktoren versagen beide Methoden; als Alternative werden Wechsel in der Rührerdrehzahl [204] oder im Reaktorkopfdruck [176] vorgeschlagen. Letztere Methode variiert die Sättigungskonzentration c_l^* über das HENRYsche Gesetz. Sie führt aber zu überhöhten Meßwerten, weil hier auch sehr kleine Blasen zum Stoffübergang beitragen; zur Begasung eines realen Prozesses können sie aber wegen ihrer langen Verweilzeit und ihrer raschen Sauerstoffverarmung keinen Beitrag leisten.

E.1.1.2 Stationäre Verfahren

Bei der stationären Methode erhält man die Konzentrationsdifferenz aufrecht, indem man fortwährend Sauerstoff in die freie Flüssigkeit einträgt (z.B. chemische Freisetzung durch Katalyse von Wasserstoffperoxid [318]) oder in ihr verbraucht (chemisch katalysierte Oxidation von Sulfit¹ oder Hydrazin [323], Kultivierung geeigneter aerober Mikroorganismen [3, 145]). Im stationären Fließgleichgewicht nimmt man an, daß Sauerstoffverbrauchs- (oder -freisetzungs-) und -übertragungsrate gleich sind. Mindestens eine dieser beiden hängt von der Konzentration c_l ab; aus deren Wert und der Austauschrate läßt sich $\beta_l a$ errechnen.

In der Literatur findet man ausführliche Vergleiche stationärer und instationärer (dynamischer) Meßverfahren miteinander [179], wobei auch besonders auf die jeweils relevanten Fehlerquellen eingegangen wird [283].

E.1.2 Unsicherheiten

Während der Messung herrschen generell gewisse Inhomogenitäten bezüglich der Konzentrationen in Gas- und Flüssigkeitsphase. Bei der Auswertung der Meßdaten müssen diese durch vereinfachende Modellannahmen ersetzt werden.

Auf den (meßbaren) Stoffübergang haben vier Größen Einflüsse: β_l , a , c_l und c_l^* . All diese Größen sind aber innerhalb des Reaktorvolumens nicht konstant verteilt.

E.1.2.1 Gasphasenvermischung

Bezüglich der dispersen Gasphase werden verschiedene Modellverstellungen verwendet, die zu unterschiedlichen $\beta_l a$ -Werten aus denselben Rohdaten führen [151, 276, 263]. (Annahme idealer Durchmischung und konstanten Sauerstoffanteils im Gas, Kolbenströmung des Gases im Reaktor, oder realistischere Zwischenformen.)

Zur Lösung dieser Problematik wurde vorgeschlagen, den zeitlichen Konzentrationsverlauf gleichzeitig in Flüssigkeit und Reaktorabgas zu verfolgen [55]; später wurde aber gezeigt, daß diese Idee nur dann brauchbar ist, wenn die Gasphase strikt monodispers ist² [177].

Weiterhin können bei einer dispersen Phase einzelne Partikel (Blasen) derselben Phase (Gas) trotz zeitlicher und räumlicher Nähe sehr unterschiedliche Zusammensetzungen aufweisen. (Dies geht dann auf unterschiedliche „Vorgeschichten“ der einzelnen Partikel zurück.) Die Gasphasenkonzentration c_g und die davon abhängige Gleichgewichtskonzentration c_l^* können also keinesfalls tatsächlich als Konstanten angesehen werden.

Die Probleme der räumlich und von Blase zu Blase variierenden Gasphasenzusammensetzung verschwinden, wenn statt Luft oder einer Gasmischung ein reines Gas benutzt wird [234]. Die Dispersionseigenschaften werden hiervon aber u.U. beeinflusst, so daß auch so nicht immer repräsentative Ergebnisse für den Stoffaustauschkoeffizienten ($\beta_l a$) gewonnen werden können.

E.1.2.2 Flüssigkeitsvermischung

Für die Flüssigkeit wird bei der Messung von $\beta_l a$ -Werten in den meisten Fällen vollständige Homogenität angenommen, obwohl diese oft nicht vollständig gegeben ist. Wie die vorliegende

¹Die sogenannte Sulfitoxidationsmethode zur Bestimmung des volumetrischen Stoffaustauschkoeffizienten $\beta_l a$ ist umstritten [314]; die chemische Reaktion läuft so schnell ab, daß es zu einer chemischen Beschleunigung des Absorptionsprozesses (Stoffaustauschvorgangs) kommt.

²Das bedeutet, daß alle Blasen denselben Durchmesser haben.

Arbeit demonstriert, sind gerade in großen Reaktoren, zumindest mit der stationären Meßmethode, große permanente Konzentrationsunterschiede innerhalb der Flüssigkeit zu erwarten.

Weiterhin sind auch die beiden Stoffaustauschparameter β_l und a keine ortsunabhängigen Konstante. Die Gasphase ist gewöhnlich nicht absolut gleichmäßig im Reaktor verteilt (extreme Ansammlung hinter den Rührerblättern, geringe Anteile in der Nähe des Reaktorbodens). Da weiterhin, bedingt durch (turbulente) Blasenverteilung und (in reinen Medien) Blasenkoaleszenz die Blasengröße eine mehr oder weniger breit verteilte Größe ist, muß a erheblich mit dem Ort variieren.

Und auch der Stoffübergangskoeffizient β_l muß mit dem Ort im Reaktor variieren. Er hängt nämlich von der (lokalen) spezifischen Energiedissipationsrate ϵ (und nach einem Modell zusätzlich von der [lokalen] kinetischen Turbulenzenergie k) ab. Diese Größe(n) sind ebenfalls räumlich stark ungleichmäßig verteilt, da nur am Rührer Turbulenz produziert wird.

Diese Anmerkungen zeigen, daß der $\beta_l a$ -Wert als konzentrierter Parameter immer nur ein Näherungswert sein kann, der von geometrischen und Betriebsparametern abhängt. Eine genau Voraussage auf Grund anderer konzentrierter Parameter (mechanischer Leistungseintrag) erscheint nur bei genauer Beibehaltung der geometrischen Ähnlichkeit aussichtsreich.

E.2 Sauerstoffaffinität

E.2.1 Oxidasen

Elementarer Sauerstoff kommt im wesentlichen am Ende der Atmungskette mit dem Stoffwechsel der Zelle in Verbindung. Hier überträgt eine Oxidase Elektronen aus der Atmungskette auf Sauerstoffmoleküle. Sie übernimmt die Elektronen von einem Cytochrom, ebenfalls einem Element der Atmungskette. Es sind verschiedene Cytochrome bekannt, und mit ihnen auch verschiedene Cytochrom-Oxidasen. Für die Backhefe werden die Cytochrome a , a_3 , b und c diskutiert [101]; die spezifische maximale Sauerstoffaufnahme ist streng proportional zum Cytochromgehalt der Zellen.

Manche Bakterien (*E. coli*, *Klebs. pneum.*) besitzen nicht das, vor allem bei höheren Organismen, weit verbreitete Cytochrom c , und daher auch keine Cytochrom- c -Oxidase.³ Sie verfügen aber über die Cytochrome d und o und die dazugehörige Oxidasen: den bd -Typ und den bo -Typ [53, 218].

Der Cytochrom- o -Zweig der Atmungskette hat eine relativ geringe Aktivität zu Sauerstoff, wird bei Gegenwart von Sauerstoff generell (konstitutiv) exprimiert und erlaubt einen hohen Energiegewinn für die Zelle. Bei geringen Sauerstoffkonzentrationen wird die Expression der Proteine für den Cytochrom- d -Zweig induziert [110]. Dieser Zweig liefert der Zelle geringeren Energiegewinn aus jedem reduzierten Sauerstoffmolekül; er hat aber eine hohe Affinität zum Sauerstoff und erlaubt dessen Nutzung auch noch bei kleinsten Konzentrationen.

Die Einzelheiten und Mechanismen der Genregulation der verschiedenen Cytochrome und Oxidasen in *E. coli* hat GUEST umfassend erklärt [110].

E.2.2 Enterobakterien

Viele Bakterien können also ihre Affinität zum Sauerstoff dem Sauerstoffangebot anpassen, wobei sie in mikroaeroben Verhältnissen sehr hohe Affinitäten erreichen können. Dieses Phänomen wurde auch bereits 1967 beobachtet [115]: Eine Kultur von *Klebsiella pneumoniae* steigerte unterhalb

³Der selektive Nachweis dieses Enzyms hat eine große Bedeutung bei der routinemäßigen Identifikation von Gattungen der Familie *Enterobacteriaceae*.

eines Sauerstoffpartialdruckes von ungefähr 10% LS plötzlich ihre Sauerstoffverbrauchsrate. Dies kann nur über eine Steigerung der Affinität möglich sein.

Klebsiellen haben die Fähigkeit, bei Bedarf molekularen Stickstoff in ihren Stoffwechsel aufzunehmen (Stickstofffixierung). Hierfür sind sie aber auf mikroaerobe Bedingungen angewiesen, weil das dafür notwendige Enzym Nitrogenase empfindlich gegen hohe Sauerstoffpartialdrücke ist.⁴ Sie schaffen sich selbst diese Bedingungen durch die Bildung einer dicken Schleimkapsel um jede Zelle; diese stellt eine Diffusionsbarriere dar, durch die Sauerstoff eindiffundieren kann, ohne daß die schädliche Konzentration für die Nitrogenase überschritten wird.

Diese Diffusionsbarriere bewirkt eine unumgängliche Erhöhung der scheinbaren Sättigungskonzentration K_M für die Sauerstoffaufnahme-kinetik; der lineare Anteil der Sättigungskurve wird vergrößert, wie in Abschnitt 3.1.3.1 (Seite 33) dargelegt.

E.2.3 Dynamik

Wenn im Bioreaktor Konzentrationsgradienten existieren, sind die suspendierten Organismen bei ihrer Zirkulation durch den Reaktor ständig schwankenden Umgebungsbedingungen ausgesetzt. Dies hat Auswirkungen auf die Gen- und Stoffwechselregulation dieser Organismen. Dieses Problem wurde bereits in Abschnitt 3.1.2 (Seite 30) berührt.

E.2.3.1 Regulationsgeschwindigkeit

Hierbei ist zu betrachten, wie schnell die Organismen auf die wechselnden Einflüsse reagieren. Im einfachsten Fall nimmt man an, daß die Regulationsmechanismen der Zellen sehr langsam sind; sie integrieren dann über Schwankungen im Sekunden- oder Minutenbereich hinweg, oder stellen sich nur in Abhängigkeit vom höchsten oder tiefsten regelmäßig auftretenden Wert ein (z.B. Induktionsschwelle). In diesem Fall ist das Verhalten der Zellen überall im Reaktor gleich.

Die Realität ist aber komplizierter: Es wurde gezeigt, daß die ATP-Konzentration in lebenden Zellen, z.B. nach einer sprunghaften Änderung der umgebenden Glukose-Konzentration, innerhalb einer einzigen Sekunde auf die Hälfte sinken kann [268]. Diese Konzentration hat vielfältigen Einfluß auf biochemische Gleichgewichte und auf das Verhalten regulatorischer Enzyme.⁵ — Ähnliche Ergebnisse berichtet auch ABEL (1990) [1].

E.2.3.2 Genregulation

Neben der Regulation der Enzymaktivität wird auch die *Menge* der einzelnen Enzyme reguliert. Dies geschieht auf den Ebenen der Transkription und (in bestimmten Fällen) Translation. Ganze Stoffwechselwege werden in Bakterien häufig auf transkriptioneller Ebene reguliert: Angebot oder Mangel eines bestimmten Substrates induzieren die Transkription mehrerer Gene zu einer einzigen (polycistronischen⁶) mRNA, von der sämtliche Enzyme eines Stoffwechselweges synthetisiert werden können (Translation).

⁴Andere biologische Systeme (Pflanzen mit endosymbiontischen Bakterien in Wurzelknöllchen) lösen dieses Problem durch die Bildung Hämoglobin-ähnlicher Sauerstoffcarrier, die hohe Sauerstoffkonzentrationen und -transportraten bei geringem Partialdruck ermöglichen.

⁵Enzyme sind dann regulatorisch relevant, wenn sie nahezu irreversible biochemische Reaktionen katalysieren. Substrat- oder produktähnliche wie auch ganz unverwandte Verbindungen können mit ihnen wechselwirken und ihre katalytische Aktivität massiv beeinflussen.

⁶Ein *Cistron* ist ein Abschnitt auf einer mRNA, der für ein Protein steht, daß (von diesem Cistron ausgehend) in einem Durchgang synthetisiert werden kann (Translation an Ribosomen). „Polycistronisch“ heißt ein mRNA-Molekül, das mehrere Cistrons, also Information zur Translation und Synthese mehrerer Proteine, enthält.

Es wurde nachgewiesen, daß bereits fünf Sekunden nach einer Veränderung der Umgebungsbedingungen die Konzentration einer entsprechenden mRNA Veränderungen zeigt; nach 90 Sekunden stellt sich die neue Gleichgewichtskonzentration zwischen Abbau und Neusynthese der mRNA ein [28]. Die Synthese eines Proteinmoleküles dauert gewöhnlich weniger als eine Sekunde; auch die Proteinkonzentrationen reagieren also schnell. Zehn Sekunden nach einem Milieuwechsel haben bestimmte Proteinkonzentrationen bereits mit Sicherheit ihre Werte geändert.

E.2.3.3 Auf- und Abbau-Gleichgewicht

Bakterien enthalten Proteasen zum Abbau nicht mehr benötigter Enzyme und Proteine. Dies gibt jedem intrazellulären Protein eine bestimmte mittlere Lebensdauer, die von der Affinität der Proteasen zu ihm abhängt. Wird ein aktiver Gencluster nach Ausbleiben des induzierenden Umwelteinflusses wieder stillgelegt, so erliegt die Neusynthese der zugehörigen Enzyme, und deren Konzentrationen fangen an zu sinken. Werden die Gene durch erneute Induktion wieder aktiviert, kommt die Produktion wieder in Gang und überwiegt anfänglich den Enzymabbau durch die Proteasen.

Dieses wechselnde Ein- und Ausschalten eines Stoffwechselweges bewirkt also, daß die Konzentrationen der Enzyme des genregulierten Stoffwechselweges um einen mittleren, relativ geringen Wert schwanken. Die Größe der Schwankungen hängt von der Größe, Komplexität und damit Auf- und Abbaugeschwindigkeit der einzelnen Proteine ab. Bei kleinen, schnell auf- und abgebauten Proteinen wird die Konzentration schnell den Umgebungseinflüssen folgen und drastisch schwanken, und umgekehrt.

Für *Saccharomyces cerevisiae* wurde gefunden, daß der globale Stoffwechselstatus in Begasungswechselexperimenten nicht von der *Dauer* der anaeroben Phase abhängt, sondern vom Verhältnis der Längen von aerober und anaerober Phase zueinander [320]. Dies unterstützt die Hypothese der zeitlich integrierenden Genregulation.

E.2.3.4 “lag”-Phasen

Wenn eine Bakterienkultur von aeroben in anaerobe Verhältnisse überführt wird, zwingt dieser Wechsel zum sofortigen Ende der Sauerstoffaufnahme. Mit den vorhandenen Enzymen kann aber ohne weiteres sofort fermentativer Stoffwechsel betrieben werden – die Zwischenprodukte werden nicht im Tri-Carbonsäure-Zyklus veratmet, sondern nach höchstens geringfügiger Modifikation ausgeschieden. Die Enzyme für diese Wege sind konstitutiv, also *immer* vorhanden; der Wechsel geht verzögerungsfrei.

Wenn umgekehrt eine anaerob gehaltene Kultur plötzlich Sauerstoff ausgesetzt wird, vergeht eine gewisse Zeit, bevor die nunmehr effizienteren oxidativen Stoffwechselwege in Gang kommen [1, 32]. Dies liegt daran, daß die Expression der notwendigen Enzyme erst anlaufen muß. Fraglich ist nun, welche Regulation resultiert, wenn die Kultur einem Wechsel aus aeroben und anaeroben Bedingungen ausgesetzt wird. Dies wurde in Abschnitt 3.1.2 (Seite 30) diskutiert.

E.3 Numerische Strömungssimulation

E.3.1 “sliding meshes”

Viele Diskretisationsgitter sind in Umfangsrichtung nicht regelmäßig geteilt, d.h. die Winkel zwischen den einzelnen senkrechten Schnittebenen im Gitter sind nicht konstant. Dadurch kann nicht immer jede Zelle an der Grenzfläche zwischen den Teilgittern genau einen einzigen Nachbarn auf

der anderen Seite der Grenzfläche haben (vgl. Abbildung E.2). Solche Fälle erfordern eine spezielle Behandlung in der Numerik. Gitterzellen, die mehr als einen Nachbarn jenseits der Grenze zwischen den Teilbereichen haben, werden dynamisch in entsprechend viele Teilzellen unterteilt, von denen jede einzeln vollwertig behandelt wird [217, 95].

Wenn ein Gitter regelmäßig geteilt ist, kann der Zeitschritt so gewählt werden, daß die radialen Gitterlinien immer kontinuierlich durchgehen, d.h. daß jede Zelle an der Grenzfläche immer genau einen einzigen Nachbarn auf der anderen Seite der Grenzfläche hat (Methode der *“clicking grids”*). Wenn die Länge der Zeitschritte frei gewählt werden soll, kann auch bei regelmäßig geteiltem Gitter eine Sonderbehandlung solcher komplizierten Nachbarschaftsverhältnisse nötig werden.

Eine eigene Art der Behandlung dieses Problems ist in [181] beschrieben. Da hier die Anzahl der Zellen in Umfangsrichtung auf beiden Seiten der Grenzfläche gleich ist, werden die Zellen in einer Schicht an der Grenzfläche dynamisch derart verzerrt, daß jede Zelle genau mit einem einzigen Nachbarn auf der anderen Seite der Grenze verbunden ist. Diese Methode ist nur bei regelmäßig geteilten Gittern sinnvoll, weil sie sonst u.U. extrem schiefwinklige Zellen produziert.

E.3.2 Gittereinfluß

In den ersten Simulationsergebnissen für die Flüssigkeitsströmung (vgl. Abschnitt 5.2, auf Seite 93) fielen achsnah, unmittelbar unter der freien Oberfläche, lokal erhöhte Werte der Turbulenzparameter k und ϵ auf.⁷ In Abschnitt 5.2.1, auf Seite 95 wurde die ursprüngliche Form der Grenzfläche zwischen innerem und äußerem Teilbereich beschrieben; u.a. lag die obere, ebene Grenzfläche zwischen innerem und äußerem Teilbereich sehr eng an der freien Flüssigkeitsoberfläche.

Um reale Effekte an der freien Oberfläche von möglichen Artefakten der Grenzfläche zwischen rotierendem und still stehendem Teilbereich zu trennen, wurde die obere ebene Grenzfläche näher an den Rührer verlagert. (Gleichzeitig wurde auch die untere ebene Grenzfläche näher an den Rührer herangerückt; vgl. Abbildung 5.6 auf Seite 94.) Erneute Simulationsrechnungen zeigten nun genau in der Höhe der (oberen) ebenen Grenzfläche, in der Nähe der Achse, lokal erhöhte Werte für die spezifische kinetische Energie k der Turbulenz. Dies ist in Abbildung E.1 dargestellt.

E.3.2.1 Winkelteilung

Die bisher beschriebenen Vorstudien wurden in Gittern gerechnet, die von MixSim (Version 1.1 [94]), einem Präprozessor und Gittergenerierer zu FLUENT, erzeugt worden waren. Die Gitter wurden in gleicher Weise für pseudostationäre und voll instationäre Berechnung definiert. Pseudostationäre Berechnungen erfordern in kritischen Regionen ziemlich hohe Gitterauflösungen; deswegen wurden die Gitter vom Gittergenerierer automatisch in der Nähe der Rührerblätter verfeinert. Abbildung E.2 zeigt einen horizontalen Querschnitt durch ein solches Gitter in Höhe des Rührers; man erkennt deutlich die Verdichtung des Gitters am Rührerblatt.

Die senkrecht stehenden radialen Gitterebenen des (dreidimensionalen) Gitters hatten im gesamten Berechnungsgebiet die gleiche ungleichmäßige Verteilung in Umfangsrichtung. In einer voll instationären Simulation werden inneres und äußeres Teilgitter gegeneinander verdreht, wie es die rechte Hälfte von Abbildung E.2 zeigt. Dabei ändern sich die Nachbarschaftsverhältnisse zwischen den Gitterzellen beiderseits der Grenzfläche zwischen „Innen“ und „Außen“. Die ungleichmäßige Winkelteilung bewirkt dabei, daß diese Nachbarschaftsverhältnisse nicht mehr eindeutig sind –

⁷Diese Werte sind deswegen besonders relevant, weil der später zu modellierende Stoffaustausch durch die freie Oberfläche maßgeblich von ihnen abhängt.

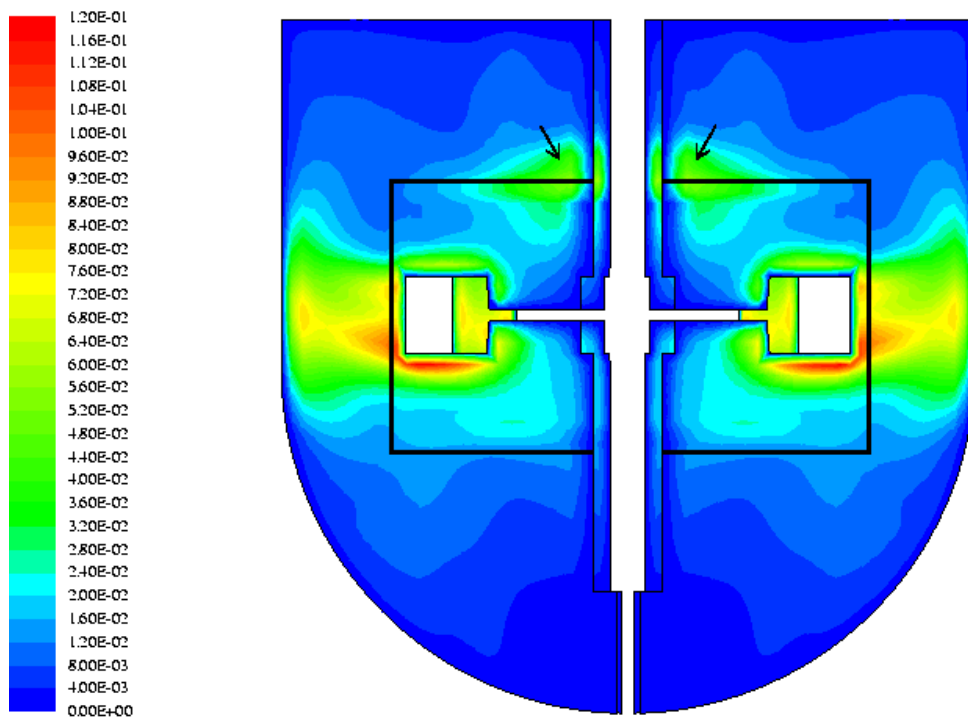


Abbildung E.1: Die instationäre Strömungssimulation mit dem in Abbildung E.2 gezeigten Gitter ergibt artifizielle Quellen für die (hier in einer vertikalen Schnittebene dargestellte) spezifische kinetische Turbulenzenergie k . Man sieht deutlich die unsinnig erhöhten Werte, wo die obere, horizontale Abgleitfläche zwischen den gegeneinander beweglichen Teilbereichen liegt (Pfeile). In dicken schwarzen Linien ist die Grenze zwischen innerem und äußerem Teilbereich markiert.

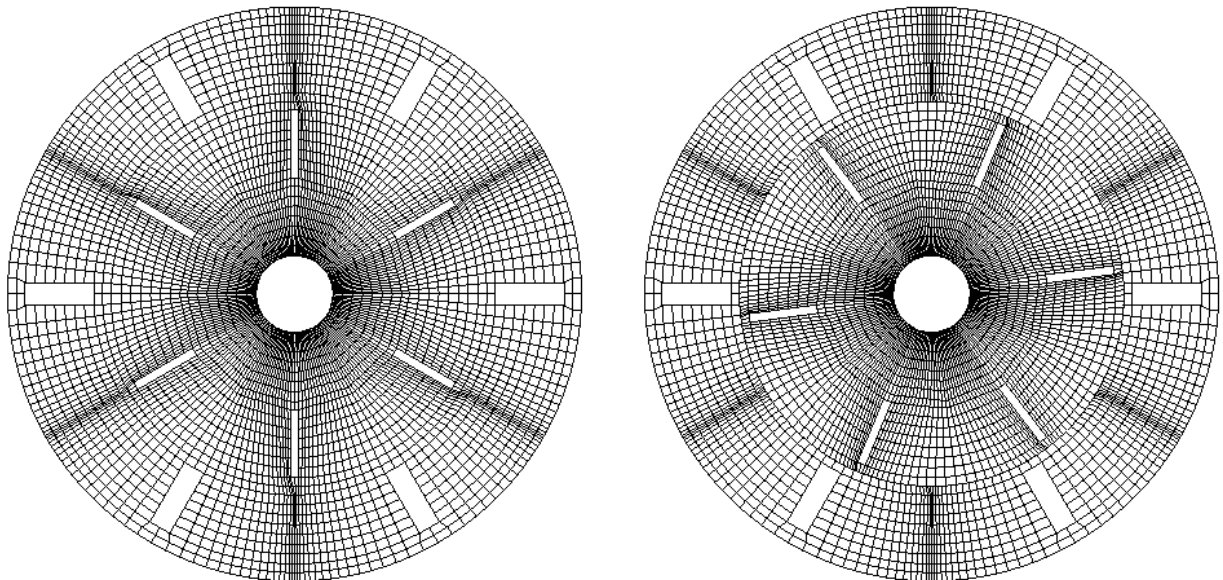


Abbildung E.2: Horizontaler Querschnitt durch ein (dreidimensionales) Gitter mit verfeinerter Auflösung am Rührerblatt. Es sind zwei unterschiedliche Zeitschritte einer instationären Simulation dargestellt – im rechten Bild sieht man, wie die radialen Gitterlinien von der Abgleitfläche zwischen den Teilbereichen unterbrochen werden.

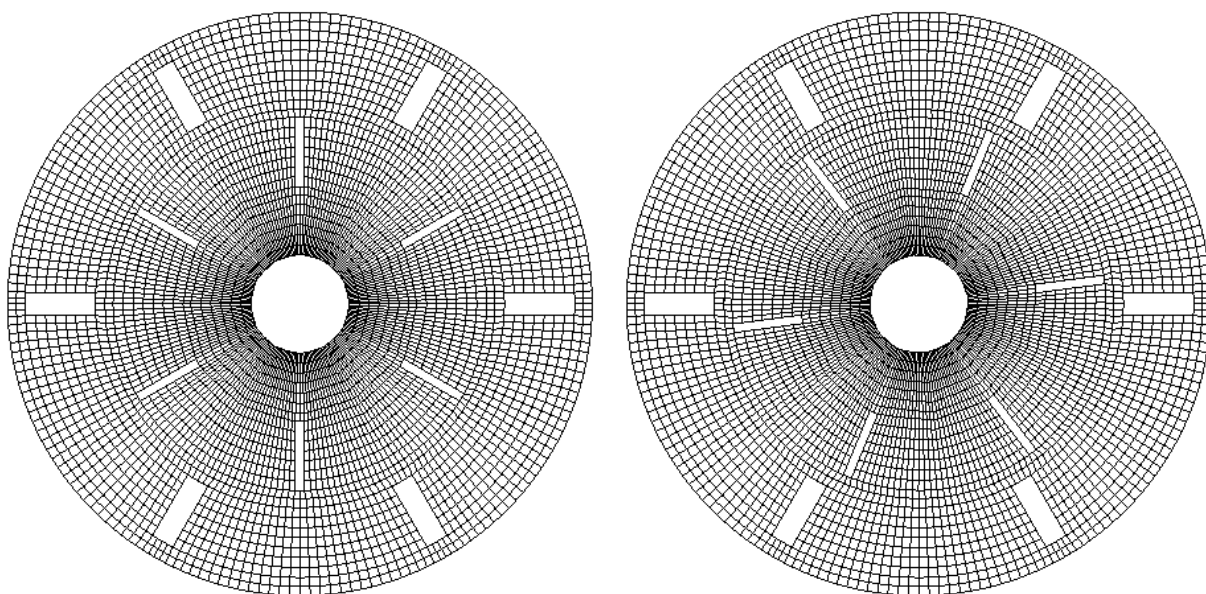


Abbildung E.3: *Horizontaler Querschnitt durch ein (dreidimensionales) Gitter mit regelmäßiger Winkelteilung an der zylindrischen Abgleitfläche zwischen den Teilbereichen. Es sind zwei unterschiedliche Zeitschritte dargestellt – in beiden (und vielen anderen) Rührerstellungen gehen die radialen Gitterlinien glatt durch die Abgleitfläche zwischen den Teilgittern; es herrschen immer einfach definierte Nachbarschaftsverhältnisse zwischen allen Gitterzellen.*

Überlappung und Überschneidung der aneinanderliegenden Zellgrenzen erschwert die numerische Diskretisation.⁸

E.3.2.2 Abhilfe

Die beschriebene Unterbrechung der radialen Gitterlinien in der instationären Simulation muß durch entsprechende Interpolation in Umfangsrichtung entlang der Grenzfläche zwischen „Innen“ und „Außen“ überbrückt werden. Die lineare Interpolation im nichtlinearen System führt aber (unter bestimmten Bedingungen) zu einer artifiziellen Turbulenzproduktion. Diese wurde an der oberen, ebenen Grenzfläche zwischen innerem und äußerem Teilbereich gefunden (s.o., Abbildung E.1 [S. 209] und Abschnitt E.3.2 [S. 208]).

Zur Vermeidung der beschriebenen Artefakte mußte also das Diskretisationsgitter verbessert werden. Die automatische Verfeinerung am Rührerblatt wurde aufgegeben, und es wurde manuell eine absolut regelmäßige Winkelteilung des Gitters an der Abgleitfläche zwischen innerem und äußerem Teilgitter realisiert. Ein solches Gitter ist, ebenfalls bei zwei unterschiedlichen Zeitschritten, in Abbildung E.3 gezeigt.⁹ In Strömungssimulationen mit solchen Gittern war die artifizielle Turbulenzproduktion an der Abgleitfläche zwischen den gegeneinander rotierenden Teilgittern nirgendwo mehr zu beobachten. Im weiteren Verlauf der vorliegenden Arbeit wurden ausschließlich solche regelmäßig geteilten Gitter verwendet.

⁸An den ebenen Grenzflächen [oben und unten] treten genau dieselben Überlappungen auf wie am zylinderman-telförmigen Anteil der Grenzfläche. Deren graphische Veranschaulichung ergibt sich, wenn man in Gedanken die beiden Gitter in Abbildung E.2 genau übereinanderlegt.

⁹Die instationäre Strömungssimulation in solch einem Gitter wird auch als Methode der „clicking grids“ bezeichnet; vgl. Fußnote E.3.1 in Abschnitt 3.3.4.5 auf Seite 208.

E.4 Trajektorienberechnungen

E.4.1 Rührerrotation

Bei der hier entwickelten Vorgehensweise zur Berechnung der Blasentrajektorien steht der Rührer (während der Trajektorienberechnung) still im Berechnungsgebiet (vgl. Abschnitt 5.3.2.1 und Fußnote 13, auf Seite 100). Die Blasen werden am Begaserring in das Berechnungsgebiet injiziert und sind dabei gleichmäßig in Umfangsrichtung verteilt. Die besondere Strömung am Rührerblatt konzentriert aber einen großen Teil der Blasenbahnen in der Wirbelschlepe hinter dem Rührerblatt.

All diese Trajektorien treten also ungefähr an derselben Stelle aus dem rotierenden Koordinatensystem (in Rührernähe) in das still stehende Bezugssystem (außen) über. Dadurch, daß die Winkelstellung des Rührers nicht verändert wird, geht also ein großer Anteil der Trajektorien nahe beieinander in den Freiraum zwischen den Schikanen. Diese Position hängt von der Winkelstellung relativ zu den Schikanen (Strömungsbrechern) ab, die der Rührer bei der Trajektorienberechnung hat.

Diese Häufung von Blasen (-trajektorien) an einer bestimmten Stelle zwischen den Strömungsbrechern ist gänzlich unrealistisch. In der Realität werden die radial mit der Flüssigkeit nach außen strömenden Gasblasen gleichmäßig über den gesamten Rotationswinkel in Umfangsrichtung verteilt.

Dieser Effekt wurde auch in das Modell eingeführt: Wann immer eine Trajektorie vom inneren, rotierenden Bezugssystem in das äußere, still stehende übertritt, wird sie um einen bestimmten Winkel in Umfangsrichtung versetzt. Dies ist in Abbildung 5.12 (Seite 103) deutlich zu sehen. Der Winkel, um den die Blasentrajektorie versetzt wird, kann bei der Berechnung vieler Trajektorien derart variiert werden, daß alle möglichen Rührerstellungen gleichmäßig repräsentiert werden.¹⁰

E.4.2 Massepunkte

Während der Trajektorienberechnung für die Gasblasen wird die tatsächliche Volumenausdehnung der diskreten Partikeln dieser sekundären Phase vernachlässigt. Es werden nur Massepunkte und deren Bewegung durch das Berechnungsgebiet simuliert.¹¹ Dadurch können diese Massepunkte in der Berechnung beliebig nah an die Wände im Berechnungsgebiet (und an dessen äußere Grenzen) herankommen.

Da der Algorithmus ursprünglich für sehr kleine Partikeln in weitläufigen Strömungen entwickelt wurde, wird auch das Eindringen der Partikeln in die wandnahe Grenzschicht im Programm (FLUENT) erkannt und behandelt. Die Partikel wird in der laminaren Grenzschicht sehr langsam und somit geradezu „eingefangen“. Dies ist für Gasblasen sicherlich unrealistisch – sie sind so groß, daß sie nie in die laminare Grenzschicht eindringen können.

Gasblasen werden also im primären numerischen Modell an Wänden unsinnig festgehalten. Dies führt zu stark verfälschten Verweilzeiten und auch unsinnigen Trajektorien. Außerdem verfälscht es stark die Stoffaustauschberechnung.

¹⁰Die gleiche Technik müßte eigentlich auch beim *Eintritt* der Gasblasen in das rotierende Bezugssystem angewendet werden. Da die Blasen hier aber noch vollkommen gleichmäßig in Umfangsrichtung verteilt sind, würde dies das Ergebnis in keiner Weise beeinflussen. Deswegen wurde dieser Schritt eingespart.

¹¹Für die Berechnung des Impulsaustausches zwischen Flüssigkeit und Gasblase wird selbstverständlich ein korrekter Widerstandskoeffizient aus dem tatsächlichen Durchmesser der Gasblase und den relevanten Stoffparametern errechnet.

Abhilfe Für die realistische Simulation der Blasentrajektorien wurde eine Sonderfunktion im kommerziellen Programmcode integriert: Sie prüft während der Trajektorienberechnung ständig, ob...

1. in unmittelbarer Nähe der Blase eine Wand liegt,¹² und in diesem Fall außerdem, ob...
2. die Blase näher an der Grenze des Kontrollvolumens zu dieser Wand liegt, als ihr aktueller Radius erlaubt.

Wenn die zweite Bedingung erfüllt ist, wird der vom aktuellen Radius der Blase geforderte Mindestabstand zur Wand *erzwungen*. Falls irgend eine Kraft (Auftrieb, Flüssigkeitsströmung, etc.) die Blase an die Wand zu drücken versucht, wird der Mindestabstand in jedem Zeitschritt der Trajektorienberechnung erneut erzwungen. Dies dauert an, bis die Blase sich so weit an der Wand entlang bewegt hat, daß sie anschließend wieder größeren Abstand von ihr gewinnen kann.

E.5 Numerischer Stofftransport

E.5.1 Massenanteile

Die den NAVIER-STOKES-Gleichungen zu Grunde liegenden Erhaltungssätze gelten für die Erhaltungsgrößen *Masse*, Impuls und Energie. Deswegen werden für die Simulation des Stofftransportes *Massenanteile* verwendet. Das führt aber bei der Behandlung in Wasser gelösten Sauerstoffes zu einem Problem. Die Massenanteile werden dann nämlich numerisch so klein, daß die begrenzte Genauigkeit schneller Computer nicht ausreicht, Simulationen mit sinnvoller Genauigkeit zu berechnen.¹³

Im entwickelten Modell wurde deswegen eine Skalierung der Massenanteile vorgenommen: Die Massenanteile, die im (kommerziellen) Löser für die NAVIER-STOKES-Gleichungen verwendet werden, sind um mehrere Zehnerpotenzen höher als die tatsächlichen Werte. Abgesehen von der Simulation von Konvektion und Dispersion werden die Werte ausschließlich in eigenen Routinen verwendet, die im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurden. Deswegen konnte dort überall ein konstanter Skalierungsfaktor integriert werden. Damit können die Simulationen ohne weiteren Aufwand mit guter Genauigkeit ausgeführt werden. (Zur Überprüfung der Genauigkeit vgl. Abschnitt E.5.3.)

Dichte Es wird angenommen, daß die physikochemischen Eigenschaften der Flüssigkeit durch den gelösten Sauerstoff nicht verändert werden. Entsprechend erhält der „Sauerstoff“ für den kommerziellen Differentialgleichungslöser ebenfalls genau dieselbe Dichte wie die verwendete Flüssigkeit. Die Viskosität und andere Eigenschaften brauchen nicht definiert zu werden, solange keine Strömungssimulation für die Flüssigkeit durchgeführt wird; letztere wurde vollständig von der Stofftransportberechnung entkoppelt, wie in Abschnitt 5.5.3 (Seite 117) dargestellt.

E.5.2 Nullpunkt

Bei der Simulation mikroaerober Prozesse treten teilweise extrem geringe Konzentrationen des gelösten Sauerstoffes auf. Im Rahmen unvermeidlicher numerischer Ungenauigkeiten können dabei

¹²Im gesamten Berechnungsgebiet sind die Kontrollvolumina („Zellen“) deutlich größer als die Blasen. Daher genügt es, zu kontrollieren, ob eine Nachbarzelle zu derjenigen Zelle, in der die Blase sich gerade befindet, als Wandzelle definiert ist.

¹³Viele Rechner erlauben die Verwendung unterschiedlich großer Datentypen, die dann unterschiedliche Genauigkeiten zulassen. Genauere Datentypen konnten in dieser Arbeit nicht verwendet werden, weil nur begrenzter Arbeitsspeicher und Rechenzeit zur Verfügung standen.

(kurzfristig) auch minimal *negative* Werte für die (oben genannten) Massenanteile auftreten. Der (kommerzielle) Löser für die NAVIER-STOKES-Gleichungen erkennt dies als physikalisch unsinnig und setzt alle negativen Massenanteile rigoros auf null.

Diese Eingriffe stören aber derart die iterative Lösung der Gleichungssysteme, daß keine Konvergenz mehr zu erreichen ist. Deswegen wurde, zusätzlich zur oben beschriebenen Skalierung (voriger Abschnitt), eine Nullpunktverschiebung zu positiven Werten eingebracht. Ein definierter, positiv von null verschiedener Massenanteil im Gleichungslöser steht also für die Gelöstsauerstoffkonzentration „null“. Damit sind (kleine) negative Konzentrationen ebenfalls realisierbar.

Die Beschreibung des Sauerstoffverbrauches mit einer Kinetik nach MONOD ist eigentlich nur für nichtnegative Konzentrationen definiert. Für die numerische Stabilität wurde die Verbrauchsrate bei negativen Konzentrationen aber nicht auf konstant null gesetzt; die Kurve wurde linear über den Nullpunkt hinaus in den negativen Konzentrationsbereich extrapoliert. Dies ermöglicht eine schnelle und sichere Konvergenz der iterativen Gleichungslösung auf das physikalisch sinnvolle Endergebnis.

E.5.3 Bilanzausgleich

Im Modell wird ein Sauerstoff*verbrauch* simuliert. Das verwendete Simulationsprogramm überprüft aber ständig die Erfüllung der geforderten Erhaltungssätze. Sowie diese verletzt werden, wird die weitere Berechnung mit einer Fehlermeldung abgebrochen.

Zur Abhilfe wurde eine zusätzliche, fiktive chemische Substanz eingeführt. Sie gleicht in allen Eigenschaften exakt dem gelösten Sauerstoff, und immer, wenn Sauerstoff verbraucht wird, wird im numerischen Modell eine identische Menge dieser „Ausgleichssubstanz“ erzeugt.

Bilanzkontrolle Mit diesen beiden chemischen Spezies konnte sehr effizient die Simulation überprüft werden: Die Summe beider Konzentrationen mußte überall immer denselben Wert haben. Alle in dieser Arbeit entwickelten Routinen werden jeweils identisch auf beide Spezies angewendet. Durch Überwachung deren gemeinsamer Gesamtkonzentration ließ sich eindeutig zeigen, daß trotz der zahlreichen Manipulationen die Erhaltungssätze im entwickelten Modell nirgends verletzt werden.

E.6 Phaseroptischer Sauerstoffsensor

In Abschnitt 6.7.3 auf Seite 131 wurde die ausführliche Kalibrierung des phaseroptischen Sauerstoffsensors („MOPS“) beschrieben und diskutiert. Einige weitere Beobachtungen und Erkenntnisse zum Detailwissen über dieses Meßgerät werden in den folgenden Unterabschnitten wiedergegeben.

E.6.1 Parameterstreuung

In Abschnitt 6.7.3.1 (Seite 131) wurde die Parameterbestimmung zu den Kalibrierfunktionen für die einzelnen Sauerstoffoptoden (phaseroptischen Sauerstoffsensoren) beschrieben. Die gefundenen Werte für die Parameter der einzelnen Sonden sind in Tabelle 6.1 (Seite 133) aufgelistet. Sie werden im folgenden diskutiert.

Die Programmierung des Meßgerätes sieht vor, daß I_0 (das Ausgangssignal vom Sekundärelektronen-Vervielfacher [SEV] bei Abwesenheit von Sauerstoff) für alle Optoden genau 9 V entspricht. Während der geräteinternen Kalibrierung wird für jede Optode ein geeigneter

Verstärkungsfaktor bestimmt, der jeweils (geräteintern) am SEV eingestellt wird, um dieses Kriterium zu erfüllen. Tabelle 6.1 zeigt aber starke Abweichungen von diesem Ziel; zur Herkunft dieser Abweichungen s. Abschnitt E.6.2.

Bauteil- und Fertigungsstreuungen führen dazu, daß der Parameter I_f für jeden Meßkanal einzeln bestimmt werden muß. Der Wert des Parameters $f_1 (= 1 - f_2)$ hängt von der molekularen Umgebung der Farbstoffmoleküle im Silikon ab, weil diese wiederum über die anteiligen Ausmaße von dynamischer und statischer Fluoreszenzlöschung entscheiden. Diese Verhältnisse verändern sich mit dem Alter des Materials und der Anzahl der überstandenen Hitzesterilisationen; daher ist auch f_1 ein spezifischer Parameter für jede einzelne Optode. Die STERN-VOLMER-Konstanten für dynamische und statische Löschung hängen ebenfalls von Details der molekularen Umgebung der Farbstoffmoleküle ab. Sowie z.B. die Silikonmatrix nicht exakt auf dieselbe Weise hergestellt wurde, treten Unterschiede zwischen den Konstanten für die einzelnen Optoden auf.

E.6.2 Schwankungen

In Abschnitt E.6.1 wurde bereits auf die geräteinterne Vorkalibrierung hingewiesen. Vor Betriebsbeginn des Sensors wird an den Sonden Sauerstofffreiheit hergestellt, und das Gerät bestimmt dann für jede Sonde einzeln einen spezifischen Verstärkungsfaktor, der jeweils zur Messung mit der einzelnen Sonde durch den internen Mikroprozessor am SEV (Sekundär-Elektronen-Vervielfacher) eingestellt wird. Die Faktoren werden so gewählt, daß bei Sauerstofffreiheit 90% der Vollast des SEV erreicht wird (9,0 V Ausgangssignal); so kann dessen dynamischer Bereich – unter Belassen einer gewissen Sicherheit – voll ausgenutzt werden.

Während der ersten acht Stunden des Meßbetriebes nach der internen Kalibrierung driftet das Signal für Sauerstofffreiheit weiter aufwärts – anfangs linear, dann in eine Sättigung zwischen 9,4 V und 9,7 V hinein. Dies ist vollständig reproduzierbar, wenn direkt aus dem laufenden Meßbetrieb heraus eine vollständige, neue, geräteinterne Kalibrierung ausgelöst wird.

Während dieser geräteinternen Kalibrierung wird kontinuierlich (moduliertes) Erregungslicht in die Optode eingestrahlt. Beim späteren Meßbetrieb wird nur noch alle 10 oder 20 Sekunden ein kurzer (modulierter) Impuls eingestrahlt, um die Belastung des Farbstoffes und sein allmähliches Ausbleichen [159] zu minimieren. Sofern der SEV auch im Meßbetrieb kontinuierlich angesteuert wird, kann die Veränderung nur in der Leuchtdiode liegen. Ihre Quantenausbeute variiert möglicherweise mit der Temperatur, die wiederum bei Dauerbetrieb eine andere sein muß als bei Impulsbetrieb.¹⁴

E.6.3 Drift und Störeinflüsse

Es ist bekannt, daß der Farbstoff bei starker, kontinuierlicher Beleuchtung langsam und kontinuierlich ausbleicht [64]. Deswegen wird im verwendeten Gerät nur mit kurzen (modulierten) Erregungslichtimpulsen gearbeitet. Dennoch ist im Langzeitbetrieb (zwei Wochen) eine gewisse Drift der Signale zu beobachten. Zur Gewinnung genauester Meßwerte ist also zumindest eine tägliche Überprüfung bzw. Korrektur des Grenzwertes I_0 sinnvoll.

Weiterhin sind Störeinflüsse bestimmter chemischer Verbindungen bekannt. Es wurde von Problemen bei der Messung in hochprozentigen ethanolischen Lösungen berichtet [63]. In der vorliegenden Arbeit wurden Einflüsse verdünnter Lösungen kleiner organischer Verbindungen auf die

¹⁴Blaue Leuchtdioden haben eine Betriebsspannung von ungefähr 2 Volt; bei einem typischen Strom von 10 mA (für eine „superhelle“ LED) wird also der winzige Halbleiterkristall ständig mit 20 mW Heizleistung erwärmt. (Die Energieabfuhr durch die ausgesandte Strahlung wird vernachlässigt.) Die verursachte Erwärmung kann als ein möglicher Grund für die Schwankungen angenommen werden.

Meßwerte untersucht. Ethanol und Glycerin zeigten hier keine eindeutigen Effekte; Azetat (neutralisierte Essigsäure) zeigte aber einen eindeutigen Einfluß auf die angezeigten Fluoreszenzintensitäten bei Sauerstofffreiheit (Abweichungen von 2% vom Meßwert von ungefähr 9,0 V).

Ein erheblicher Einfluß wurde auch für Temperaturschwankungen gefunden. Eine Veränderung der Temperatur um 18K bewirkte eine Veränderung des Signales um 0,03V per K, entsprechend $\frac{1}{3}\%$ des Meßwertes per K.

Das Meßprinzip gestattet eine hohe Genauigkeit bei kleinsten Sauerstoffkonzentrationen. Wegen der (betragsmäßig) großen Steigung der Ausgleichskurven bei kleinsten Sauerstoffkonzentrationen (Abbildung 6.6, auf Seite 132) machen die angegebenen Veränderungen in der gemessenen Fluoreszenzintensität nur geringe Unsicherheiten aus. Eine Schwankung der gemessenen Fluoreszenzintensität um 0,1 V, also gut 1% des Meßsignales nahe Sauerstofffreiheit, entspricht hier nur einer Unsicherheit von 0,4% Luftsättigung.

E.7 Fed-batch-Fermentation

Im Anschluß an die in Abschnitt 6.8.3 (Seite 136) beschriebenen Experimente wurde die Fermentation in einer mehrteiligen Fed-Batch-Phase weitergeführt. Die daraus abgeleiteten Ergebnisse werden hier berichtet.

Es wurden verschiedene Fütterungsraten (mit 10%-iger Glycerinlösung) bei Blasenbegasung durch den Begaserring eingestellt. Die Pumpe wurde ungefähr im Minutenrhythmus stoßweise angesteuert; deswegen ergaben sich stark schwankende Konzentrationsverläufe an den Sauerstoffsonden. Die qualitative Form der räumlich verteilten Konzentrationen entsprach aber vollständig den oben aufgelisteten Meßergebnissen.

Weiterhin wurden mit der Abgasanalyse der Sauerstoffverbrauch und die Kohlendioxidproduktion beobachtet. Bei mittleren Sauerstoffkonzentrationen zwischen 33% LS¹⁵ und 0,5% LS (abhängig von der Fütterungsrate) wurden jeweils konstant zwei Mol Sauerstoff je Mol Glycerin verbraucht und zwei Mol Kohlendioxid je Mol Glycerin produziert.

(Die genauen Zahlenwerte sind: Bei 16% LS: für beide Größen 2,05; bei 33% LS: 2,1 $\left[\frac{\text{O}_2}{\text{Glycerin}}\right]$ und 2,2 $\left[\frac{\text{CO}_2}{\text{Glycerin}}\right]$; bei 0,5% LS: 1,98 $\left[\frac{\text{O}_2}{\text{Glycerin}}\right]$ und 1,94 $\left[\frac{\text{CO}_2}{\text{Glycerin}}\right]$.) Der respiratorische Quotient lag also in allen drei Fällen sehr nahe bei 1,0.

Die Verhältnisse der Fütterungsraten zueinander entsprechen innerhalb ca. 10% den Verhältnissen der gemessenen treibenden Konzentrationsdifferenzen für den Stoffaustausch (vereinfachende Annahme vollständiger Durchmischung im Reaktor). Daher existiert kein eindeutiges Indiz für wesentliche Gärung parallel zum (mikro-) aeroben Stoffwechsel bei der höchsten Fütterungsrate.

E.8 Anmerkungen zum *scale-up* aerober Bioprozesse

Die vorliegende Arbeit weist vielfach auf die Anwendung von (numerischen) Modellen zur Beschreibung maßstabsvergrößerter Prozesse hin; hier liegt großes Potential für Einsparungen und erhöhte Erfolgssicherheit bei der Etablierung industrieller Prozesse.

Bei der Maßstabsvergrößerung begaster Bioprozesse gilt allgemein die Konstanzhaltung des spezifischen Leistungseintrages als Methode der Wahl. Die alte Regel, (mindestens) eine charakteristische dimensionslose Kennzahl konstant zu halten, ist hier also bereits verlassen worden. Die Konstanzhaltung der REYNOLDSZahl hat sich längst als unzureichend erwiesen.

¹⁵LS = Luftsättigung.

E.8.1 Andere Kriterien

In Prozessen mit scherempfindlichen Organismen (Pilze) ist es oft ratsam, die Rührerspitzen-geschwindigkeit bei der Maßstabsvergrößerung konstant zu halten, um die höchsten auftretenden *Scherkräfte* nicht zu erhöhen. Wenn gleichzeitig effizienter Stoffaustausch mit einer dispersen Gasphase erforderlich ist, wird dann eine drastische Erhöhung des Gasstromes nötig, die schnell zur „Überflutung“ des Rührers führt: Die Auftriebsströmung der Gasblasen überwiegt die Pumpwirkung des Rührers, der Rührer wird ganz vom Gas umspült und sein Pumpeffekt bricht zusammen.

In dispersen Systemen mit starker Koaleszenz (hoher Volumenanteil der dispersen Phase, keine Koaleszenzhemmung; z.B. bei vielen Emulsionen) ist es u.U. notwendig, die Zirkulationszeit konstant zu halten. Dies wurde in Abschnitt 1.4.1 (Seite 8) genauer diskutiert.

E.8.2 Begasungsrate

Eine langdiskutierte Frage bei der Maßstabsvergrößerung begaster Rührkesselreaktoren ist, wie der Gasvolumenstrom mit dem linearen Maßstab zu vergrößern ist. Diskutiert werden vor allem die Konstanzhaltung der volumetrischen Begasungsrate ($\frac{V_g}{V}$) bzw. alternativ die Konstanzhaltung der Gasleerrohrgeschwindigkeit w_{g0} .

Es wurde z.B. die Beobachtung gemacht, daß der Einfluß der Begasung auf den Rührerleistungseintrag bei konstanter volumetrischer Begasungsrate in der Maßstabsvergrößerung konstant bleibt [56]. Dies ist überraschend, da auf der anderen Seite leicht zu zeigen ist, daß der (relative) disperse Gasvolumenanteil im Rührkessel nur bei Konstanzhaltung der Gasleerrohrgeschwindigkeit in der Maßstabsvergrößerung konstant bleibt (s. dieselbe Quelle).

Gasvolumenanteil Wenn das Gas oder dessen relevanter Inhaltsstoff (Sauerstoff in Luft) vollständig in der Flüssigkeit absorbiert würde, so müßte der Gasvolumenstrom bei der Maßstabsvergrößerung proportional mit dem Volumen der absorbierenden Flüssigkeit gesteigert werden. Nur so wäre z.B. eine vergleichbare Sauerstoffversorgung zwischen Labor- und Produktionsreaktor gewährleistet.

Die vollständige Absorption ist aber ein sehr unrealistisches Szenario. Viel realistischer ist der entgegengesetzte Grenzwert, nämlich daß Gasvolumenstrom und -zusammensetzung bei Gaseinlaß und Gasaustritt (annähernd) gleich sind. Betrachtet man nun ersatzweise eine homogene Blasensäule, so wird klar, daß hier die (spezifische) Phasengrenzfläche a die ausschlaggebende Größe ist. Um (bei gleicher Blasengröße) in Labor- und Produktionsreaktor dieselbe Phasengrenzfläche zu erhalten, muß derselbe Gasvolumenanteil erreicht werden; das erfordert jeweils dieselbe *Gasleerrohrgeschwindigkeit*. Die Begasungsrate wird in diesem Fall nicht mit dem Flüssigkeitsvolumen, sondern nur mit der (horizontalen) Querschnittsfläche gesteigert.

E.8.3 Nichtähnlichkeit

Eine konstante (spezifische) Phasengrenzfläche führt (bei konstanter Gaszusammensetzung und -strömung sowie konstanter Konzentration in der Flüssigkeit) nur dann zu derselben Stoffübergangsrate, wenn auch der lineare Stoffübergangskoeffizient β_l identisch ist. Das setzt gleiche Turbulenzintensitäten in Labor- und Produktionsreaktor voraus.

Zeitkonstanten In Rührkesseln sind hohe Turbulenzgrade auf kleine Anteile des Reaktorvolumens beschränkt, nämlich unmittelbar an den Rührern. Dadurch sind sowohl (über die Blasengröße) die lokale spezifische Phasengrenzfläche a als auch der lineare Stoffaustauschkoeffizient β_l

ortsabhängig. Die Größe der Zone, in der intensivierter Stoffaustausch stattfindet, wächst aber bei der Maßstabsvergrößerung nicht unbedingt im gleichen Verhältnis wie das gesamte Reaktorvolumen.

Bei geometrisch ähnlicher Vergrößerung müßten nämlich zum Erhalt echter Ähnlichkeit im Sinne konstanter Kennzahlen auch die Stoffparameter sich drastisch ändern. Sie bleiben aber in der Realität konstant.

Wenn nun z.B. Blasenkoaleszenz eine große Rolle spielt, so ist deren *Geschwindigkeit* und also die *Lebensdauer* der kleinen Blasen relevant, bevor sie miteinander zu größeren koaleszieren. Da die Stoffeinträge auf das Koaleszenzverhalten nicht mitwachsen, schrumpft der Anteil, den die mit Kleinblasen erfüllte Zone am Reaktorvolumen ausmacht. Deswegen reicht es gerade in koaleszierenden Systemen bei der Maßstabsvergrößerung nicht aus, Leistungseintrag und Gasleerrohrgeschwindigkeit konstant zu halten. Vielmehr wird die Begasungsrate zusätzlich angehoben. Dabei entsteht die Gefahr, daß der Rührer „überlastet“ wird, so daß die Auftriebskräfte des Gases überwiegen und der Rührer vertikal von Gas überflutet und umspült wird.

Turbulenzzerfall In vollständig koaleszenzgehemmten Systemen fällt der beschriebene Einfluß weg; idealerweise existiert überall eine homogene, einheitliche Blasengrößenverteilung. Neben einer örtlichen Variation des Gasvolumenanteils in der Strömung werden hier auch die räumlichen Unterschiede in der Turbulenzintensität relevant. Am Rührer wird Turbulenz in Form von großen Wirbeln erzeugt. Diese Wirbel zerfallen im Lauf der Strömung allmählich zu immer kleineren Wirbeln, bis sie vollständig in molekulare Wärmebewegung „dissipiert“ werden. Die Geschwindigkeit dieses Zerfalls (vom Primärwirbel über den Wirbel in Blasengröße, der also den Stoffaustausch antreibt, bis zur reinen Wärme) ist wiederum stoffabhängig. Das bedeutet, daß die Zone, in der Turbulenz für hohen Stoffaustausch sorgt, nicht einfach proportional mit dem Reaktorvolumen mitwächst. So erklären sich wiederum Abweichungen von der theoretischen Grundregel, daß bei konstantem Leistungseintrag $\left(\frac{P}{V}\right)$ und konstanter Gasleerrohrgeschwindigkeit (w_{g0}) auch Gasvolumenanteil ($\overline{\varepsilon_g}$) und Sauerstoffübertragungsrate (OTR) konstant sein sollten.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Die Veränderung des spezifischen Leistungseintrages mit dem Maßstab bei Anwendung verschiedener <i>scale-up</i> -Kriterien	8
2.1	Leistungscharakteristik eines Sechs-Blatt-Scheiben-Rührers	14
2.2	Die Umströmung eines Rührerblattes am Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer	19
2.3	Die Bildung von schlauchförmigen Wirbeln hinter einem Rührerblatt am Sechs-Blatt-Scheiben-Rührer	19
2.4	Die Veränderung des (relativen) Rührerleistungseintrages mit der Begasungskennzahl	20
3.1	Ein typischer Graph für die MONOD-Kinetik	32
3.2	Zirkulation am Scheibenrührer und Struktur des Modelles von CUI <i>et al.</i> (1996) .	39
3.3	Eine Schnittebene für eine zweidimensionale Strömungssimulation	40
4.1	Eine allgemeingültige Skizze der Spektralfunktion für die kinetische Turbulenzenergie in Abhängigkeit von der Wellenzahl	57
4.2	Beispiel für eine gemessene Spektralfunktion der Turbulenz	58
4.3	Beispiel einer <i>large-eddy</i> -Simulation	75
4.4	Beispiel einer Schar von Trajektorien, wie sie in der EULER/LAGRANGE-Methode berechnet werden	83
5.1	Reaktorgeometrie von der Seite	88
5.2	Reaktorgeometrie in Draufsicht	89
5.3	Rotationssymmetrie im Pilotreaktor	90
5.4	Optimierte Rotationssymmetrie für die Voruntersuchungen	91
5.5	In den Vorstudien simuliertes Reaktorsegment	92
5.6	Die Geometrie des Rechengebietes für die korrekte Reaktorgeometrie	94
5.7	Vergleich der Voraussagen von pseudostationärer und voll instationärer Simulations für das Strömungsfeld in der Rührerebene.	96
5.8	Vergleich der Voraussagen von pseudostationärer und voll instationärer Simulations für das Strömungsfeld in der vertikalen Mittelebene.	97
5.9	Vergleich der Voraussagen von pseudostationärer und voll instationärer Simulation für die lokale spezifische Energiedissipationsrate	98

5.10	Absolutes und relatives Geschwindigkeitsfeld in der Rührerebene für die Blasenbahnberechnungen	101
5.11	Unrealistische Blasenbahn aus einer Berechnung mit dem ursprünglichen Algorithmus	102
5.12	Blasenbahn aus einer Berechnung mit dem modifizierten Algorithmus	103
6.1	Schemaskizze des Gasphasen-Sauerstoff-Analysators	122
6.2	Schemaskizze einer Sauerstoffoptode	127
6.3	Schemaskizze des faseroptischen Sauerstoffsensors	128
6.4	Linearität von Gasflußreglern und CLARK-Elektrode	131
6.5	Kalibrierung des Sauerstoff-Gasanalysators	132
6.6	Kalibrierung des faseroptischen Sauerstoffsensors	132
6.7	Die Streuung der einzelnen Meßwerte in der Kalibrierung des faeroptischen Sauerstoffsensors von den Ausgleichsfunktionen	133
6.8	Die Einbaupositionen der faseroptischen Sauerstoffsonden	138
6.9	Ablauf der Fermentation	139
6.10	Dynamische $\beta_I a$ -Messung, zeitlicher Konzentrationsverlauf	141
7.1	Die Blasengrößenverteilung in der Simulation	149
7.2	Die Verteilung der simulierten Blasenverweilzeiten	150
7.3	Die Verteilung der simulierten Blasenverweilzeiten, Summenkurve	150
7.4	Simulierte Blasenverweilzeitverteilung, Validierung	151
7.5	Vorausgesagtes Sauerstoffkonzentrationsprofil in der Flüssigkeit für reine Oberflächenbegasung	153
7.6	Vorausgesagtes Profil für die Sauerstoffaufnahme bei reiner Oberflächenbegasung	155
7.7	Vorausgesagtes Sauerstoffkonzentrationsprofil in der Flüssigkeit für volle Oberflächen- und Blasenbegasung	156
7.8	Räumliche Darstellung der Orte mit dem höchsten lokalen Gasanteil	157
7.9	Mischzeitbestimmung (Simulation) im ursprünglichen Reaktor	159
7.10	Mischzeitbestimmung (Simulation) im maßstabsvergrößerten Reaktor	160
7.11	Simulierte Abhängigkeiten von Gasvolumenanteil und OTR von der Rührerdrehzahl	162
7.12	Vorausgesagtes Konzentrationsprofil bei verminderter Rührerdrehzahl	163
7.13	Vorausgesagtes Konzentrationsprofil bei gesteigerter Rührerdrehzahl	164
7.14	Vergleich der Modellvoraussagen für die verschiedenen Wege der Maßstabsvergrößerung	168
7.15	Vorausgesagtes Konzentrationsprofil bei Maßstabsvergrößerung bei konstantem Leistungseintrag und Gasleerrohrgeschwindigkeit	170
7.16	Verteilungskurve für die Gelöstsauerstoffkonzentration bei reiner Oberflächenbegasung	172
7.17	Verteilungskurve für die Gelöstsauerstoffkonzentration bei vollständiger Blasen- und Oberflächenbegasung	173

7.18	Der zeitliche Verlauf der Sauerstoffkonzentration, der ein Bakterium in einer oberflächenbegasten Fermentation ausgesetzt ist	174
7.19	Der zeitliche Verlauf der Sauerstoffkonzentration, der ein Bakterium in einer mit Blasen begasten Fermentation ausgesetzt ist	175
E.1	Artifizielle Turbulenzproduktion an der Grenze zwischen „Innen“ und „Außen“ . .	209
E.2	Ein Gitter mit verfeinerter Auflösung am Rührerblatt	209
E.3	Ein Gitter mit regelmäßiger Winkelteilung	210

Tabellenverzeichnis

6.1	Parameter für die mathematische Funktion zur Beschreibung der Meßsignale des faseroptischen Sauerstoffsensors	133
6.2	Zusammensetzung des Vor- und Stammkulturmediums	135
6.3	Zusammensetzung der Spurenelementlösung Nr. 7	136
6.4	Zusammensetzung des Fermentationsmediums nach TAG	136
6.5	Zusammensetzung der Spurenelementlösung „Evans“	137
6.6	Die gemessenen Gelöstsauerstoffkonzentrationen	140
7.1	Die simulierten Gelöstsauerstoff-Konzentrationen	152
7.2	Sauerstoffkonzentration, Gasvolumenanteil und OTR (=OUR) bei der Drehzahlvariation	161
7.3	Sauerstoffkonzentration, Gasvolumenanteil und OTR aus den Simulationen zur Maßstabsvergrößerung	167
7.4	Der mechanische Leistungseintrag in verschiedenen Simulationsrechnungen	171
C.3	Systematische Übersicht der wichtigsten Kennzahlen	192

Literaturverzeichnis¹⁶

[1] 206, 207

ABEL, C.; *Untersuchungen zum Scale down von Gelöstsauerstoffbedingungen bei Backhefe-Fermentationen*; Dissertation, Universität Hannover (1990).

[2] 44

ABID, M., XUEREB, C., BERTRAND, J.; *Hydrodynamics in vessels stirred with anchors and gate agitators: Necessity of a 3-D Modelling*; Chem. Eng. Res. Des., **70**, 7, S. 377-384 (1992).

[3] 204

ADLER, I., FIECHTER, A.; *Characterization of bioreactors using biological test procedures*; Chem. Ing. Tech., **55**, 4, S. 322-323 (1983).

[4] 245

Advances in Biochemical Engineering, Second Conference on—, Brighton, UK, 4-6 July, 1994; Institution of Chemical Engineers, Rugby, Warwickshire, UK (1994).

[5] 37

ALVES, S. S., VASCONCELOS, J. M. T., BARATA, J.; *Alternative compartment models of mixing in tall tanks agitated by multi-Rushton turbines*; Chem. Eng. Res. Des., **75**, S. 334-338 (1997).

[6] 32

AMANULLAH, A., BABA, A., MCFARLANE, C. M., EMERY, A. N., NIENOW, A. W.; *Biological Models of Mixing Performance in Bioreactors*; S. 381-400 in [222] (1993).

[7] 43

ARMENANTE, P. M., CHOU, C.-C., HEMRAJANI, R. R.; *Comparison of experimental and numerical fluid velocity distribution profiles in an unbaffled mixing vessel provided with a pitched-blade turbine*; S. 349-356 in [292] (1994).

[8] 125

ATKINS, P. W.; *Physical Chemistry*; 4th ed., Oxford University Press, Oxford (1990).

[9] 52

ATKINSSON, B., MAVITUNA, F.; *Biochemical Engineering and Biotechnology Handbook*; The Nature Press, MacMillan Publ. (1983); zitiert in [315].

¹⁶Zu jeder Literaturstelle ist mit Seitenzahlen angegeben, wo sie in der vorliegenden Arbeit zitiert wird.

- [10] 145, 146
AUNINS, J. G., HENZLER, H.-J.; *Aeration in Cell Culture Bioreactors*; S. 219–281 in [254, vol. 3] (1993).
- [11] 123
AYLWARD, G. H., FINDLAY, T. J. V.; *Datensammlung Chemie in SI-Einheiten*; 2. Aufl., VCH, Weinheim (1986).
- [12] 37
BADER, F. G.; *Modelling mass transfer and agitator performance in multiturbine fermentors*; Biotechnol. Bioeng., **30**, S. 37–51 (1987).
- [13] 5, 24
BAERNS, M., HOFMANN, H., RENKEN, A.; *Chemische Reaktionstechnik*; 2. Aufl., Thieme, Stuttgart (1992).
- [14] 15, 29, 38
BAJPAI, R. K., REUSS, M.; *Coupling of mixing and microbial kinetic for evaluating the performance of bioreactors*; Can. J. Chem. Eng., **60**, S. 384–392 (1982).
- [15] 38
BAJPAI, R. K., REUSS, M.; *Considerations of macromixing and micromixing in semi-batch stirred bioreactors*; Am. Chem. Soc. Symp. Ser., **196**, S. (Chem. Reaction Eng., Boston) (1982).
- [16] 38
BAJPAI, R. K., SOHN, P. U.; *Stage models for mixing in stirred bioreactors*; S. 13–21 in [130] (1987); zitiert in [256].
- [17] 48
BAKKER, A., FASANO, J. B., MYERS, K.; *Effects of flow pattern on the solids distribution in a stirred tank*; S. 1–8 in [292] (1994).
- [18] 46
BAKKER, A., LAROCHE, R. D., WANG, M. H., CALABRESE, R. V.; *Sliding mesh simulation of laminar flow in stirred reactors*; Chem. Eng. Res. Des., **75**, 1, S. 42–44 (1996).
- [19] 43
BAKKER, A., MYERS, K. J., WARD, R. W., LEE, C. K.; *The laminar and turbulent flow pattern of a pitched blade turbine*; Chem. Eng. Res. Des., **74**, 5, S. 485–491 (1996).
- [20] 20, 47, 48
BAKKER, A., VAN DEN AKKER, H. E.; *A computational study on dispersing gas in a stirred reactor*; S. 37–46 in [155] (1992); zitiert in [271].
- [21] 47, 48, 248
BAKKER, A., VAN DEN AKKER, H. E. A.; *A computational model for the gas–liquid flow in stirred reactors*; Chem. Eng. Res. Des., **72**, S. 594–606 (1994).

- [22] 41, 43, 47, 235, 246, 247

BAKKER, A., VAN DEN AKKER, H. E. A.; *Single-phase flow in stirred reactors*; Chem. Eng. Res. Des., **72**, S. 583–593 (1994).

- [23] 49, 228

BAKKER, R. A., VAN DEN AKKER, H. E.; *A computational study of chemical reactors on the basis of micromixing models*; S. 259–266 in [292] (1994).

- [24] 50, 79

BAKKER, R. A., VAN DEN AKKER, H. E. A.; *A Lagrangian description of micromixing in a stirred tank reactor using 1D-micromixing models in a CFD flow field*; Chem. Eng. Sci., **51**, 11, S. 2643–2648 (1996).

- [25] 124

BAMBOT, S. B., HOLAVANAHALI, R., LAKOWICZ, J. R., CARTER, G. M., RAO, G.; *Phase fluorometric sterilizable optical oxygen sensor*; Biotechnol. Bioeng., **43**, 11, S. 1139–1145 (1994).

- [26] 203

BANDYOPADHYAY, B., HUMPHREY, A. E., TAGUCHI, H.; *Dynamic Measurement of the volumetric oxygen transfer coefficient in fermentation systems*; Biotech. Bioeng., **9**, S. 533–544 (1967).

- [27] 25, 236

BANIM, R. S., TIERNEY, M. J., BRETT, P. N., QUARINI, G.; *CFD modelling of convective heat transfer around a probe in a mixer*; S. 83–93 in [34] (1996).

- [28] 207

BARFORD, J. P., PAMMENT, N. B., HALL, R. J.; *Lag phases and transients*; S. 55–89 in [31] (1982); zitiert in [303].

- [29] 144

BARIGOU, M., GREAVES, M.; *Bubble-size distributions in a mechanically agitated gas–liquid contactor*; Chem. Eng. Sci., **47**, 8, S. 2009–2025 (1992).

- [30] 165

BARIGOU, M., GREAVES, M.; *Gas holdup and interfacial area distributions in a mechanically agitated gas–liquid contactor*; Chem. Eng. Res. Des., **74**, 4, S. 397–405 (1996).

- [31] 227

BAZIN, M. J. (ed.); *Microbial Population Dynamics*; CFC Press, Boca Raton, FL (1982); zitiert in [303].

- [32] 207

BELLGARDT, K.-H.; *Modellbildung des Wachstums von Saccharomyces cerevisiae in Rührkesselreaktoren*; Dissertation, Universität Hannover (1984); zitiert in [303].

- [33] 119
BELLGARDT, K. H., GÄBEL, T., GOLLMER, K., LIEHR, E., NOTHNAGEL, J., POSTEN, C., SCHULZE, W.; *UBICON – a process control system for biotechnological processes*; Bioeng., **8**, S. 27–33 (1992); zitiert in [93].
- [34] 227, 229, 231, 231, 235, 236, 240, 241, 241, 249, 251
BENKREIRA, H. (ed.); *Fluid Mixing 5; Conference at Bradford University, 4–5 July 1996*; Inst. Chem. Engineers, Rugby (1996).
- [35] 232, 237, 241, 249
BERTRAND, J. (ed.); *Mixing 97; 9th European Conference on Mixing, Cachan, France, 1997*; Lavoisier, Paris (1997).
- [36] 79
BIGGS, M. J., HUMBY, S. J.; *Lattice-gas automata methods for engineering*; Chem. Eng. Res. Des., **76**, S. 162–174 (1998).
- [37] 19
BIRCH, D., AHMED, N.; *The influence of sparger design and location on gas dispersion in stirred vessels*; Chem. Eng. Res. Des., **75**, 7, S. 487–496 (1997).
- [38] 70
BLOM, J.; *An experimental determination of the turbulent PRANDTL number in a developing temperature boundary layer*; Ph.D. thesis, Technical University of Eindhoven (1970); zitiert in [311].
- [39] 39
BOLTERSDORF, U., DEERBERG, G., SCHLÜTER, S.; *Dynamic Simulation of Complex Reaction Schemes and Biochemical Applications in Stirred Tank Reactors with Respect to Imperfect Mixing*; 33rd European Symposium of the Working Party for Computer Aided Process Engineering (Escape 10), 7.–10. Mai 2000, Florenz. (2000).
- [40] 68
BOUSSINESQ, J.; *Théorie de l'écoulement tourbillant*; Mem. Acad. Sci., **23**, S. 46 (1877); zitiert in [62].
- [41] 26
BOUSSINESQ, J.; *Calculation of the cooling effects of fluid streams*; J. Math. Phys. Appl., **6**, S. 285 (1905); zitiert in [205].
- [42] 84
BOYSAN, F. et al.; (—); Chem. Eng. Res. Des., **60**, S. 222 (1982); zitiert in [23].
- [43] 41, 49, 50
BOYSAN, F., CLIFFE, K. R., LECKIE, F., SCRAGG, A. S.; *The growth of Catharanthus roseus in stirred tank bioreactors*; S. 245–258 in [154] (1988).

- [44] 19
BRAUER, H., SCHMIDT-TRAUB, H.; *Flüssigkeitsbegasung mit Rührern – Teil 1: Strömungsvorgänge und Leistungsbedarf der Rührer*; Chem. Ing. Tech., **44**, 23, S. 1329–1332 (1972).
- [45] 59
BRODKEY, R. S.; *Turbulence in Mixing Operations*; Academic Press, New York (1975); zitiert in [168].
- [46] 44
BRUCATO, A., CIOFALO, M., GRISAFI, F., MICALE, G.; *Complete numerical simulation of flow fields in baffled stirred vessels: The inner-outer approach*; S. 155–162 in [292] (1994).
- [47] 39
BRUCATO, A., MAGELLI, F., NOCENTINI, M., RIZZUTI, L.; *An application of the network-of-zones model to solids suspension in multiple impeller mixers*; Chem. Eng. Res. Des., **69**, 1, S. 43–52 (1991).
- [48] 146
BRUMFIELD, L. K.; (—); M. Sc. Thesis, Purdue University (1971); zitiert in [266].
- [49] 37
BRYANT, J.; *The characterization of mixing in fermenters*; Adv. Biochem. Eng., **5**, S. 101–123 (1977); zitiert in [256].
- [50] 20
BUJALSKI, W., AMANULLAH, A., SCHMITZ, R., NIENOW, A. W.; *A comparison of torque fluctuations and gassed power characteristics for a range of radial flow impellers in water*; S. 315–326 in [34] (1996).
- [51] 36
BYUN, T. G., ZENG, A. P., DECKWER, W. D.; *Reactor comparison and scale-up for the microaerobic production of 2,3-butanediol by Enterobacter aerogenes at constant oxygen transfer rate*; Bioprocess Eng., **11**, 4, S. 167–175 (1994).
- [52] 22, 25, 27, 51, 62, 109, 145
CALDERBANK, P. H., MOO-YOUNG, M. B.; *The continuous phase heat and mass transfer properties of dispersions*; Chem. Eng. Sci., **16**, S. 39–54 (1961).
- [53] 205
CALHOUN, M. W., ODEN, K. L., GENNIS, R. B., TEIXEIRA DE MATTOS, M. J., NEIJSEL, O. M.; *Energetic efficiency of Escherichia coli: Effects of mutations in components of the aerobic respiratory chain*; J. Bacteriol., **175**, 10, S. 3020–3025 (1993).
- [54] 129
CARRAWAY, E. R., DEMAS, J. N., DEGRAFF, B. A., BACON, J. R.; *Photophysics and photochemistry of oxygen sensors based on luminescent transition-metal complexes*; Anal. Chem., **63**, S. 337–342 (1991).

- [55] 204
CHAPMAN, C. M., GIBILARO, L. G., NIENOW, A. W.; *A dynamic response technique for the estimation of gas-liquid mass transfer coefficients in a stirred vessel*; Chem. Eng. Sci., **6**, S. 891–96 (1982).
- [56] 216
CHAPMAN, C. M., NIENOW, A. W., COOKE, M., MIDDLETON, J. C.; *Particle–gas–liquid mixing in stirred vessels. Part II: Gas–liquid mixing*; Chem. Eng. Res. Des., **61**, S. 82–95 (1983).
- [57] 249
CHAUDHARI, R. V., RAMACHANDRAN, P. A.; *Three phase slurry reactors*; AIChE J., **26**, 2, S. 177–201 (1980).
- [58] 50
CHERRY, R. S., KWON, K. Y.; *Transient shear stresses on a suspension cell in turbulence*; Biotechnol. Bioeng., **36**, 6, S. 563–571 (1990).
- [59] 252
CHHABRA, R. P., DE KEE, D. (ed.); *Transport Processes in Bubbles, Drops, and Particles*; Hemisphere, New York (1992).
- [60] 23, 27
CHIAMPO, F., CONTI, R.; *Gas hold-up and mass transfer studies in tall, multi-impeller reactors*; S. 73–79 in [292] (1994).
- [61] 25, 25, 25, 47
CLIFT, R., GRACE, J. R., WEBER, M. E.; *Bubbles, Drops, and Particles*; Academic Press, New York (1978).
- [62] 73, 78, 78, 228, 234, 239, 246, 248, 251
COLLINS, M. W., CIOFALO, M.; *Computational fluid dynamics and its application to transport processes*; J. Chem. Tech. Biotechnol., **52**, S. 5–47 (1991).
- [63] 214
COMTE, A.; (*Persönliche Mitteilung*); Universität Hannover/GBF Braunschweig (1998).
- [64] 126, 127, 214
COMTE, A., KOHLS, O., SCHEPER, T.; *Faseroptische Chemo- und Biosensoren*; Chemie in Labor und Biotechnik, **46**, 1, S. 18–22 (1995).
- [65] 39, 39
CUI, Y. Q., VAN DER LANS, R. G. J. M., NOORMAN, H. J., LUYBEN, K. C. A. M.; *Compartment mixing model for stirred reactors with multiple impellers*; Chem. Eng. Res. Des., **74**, S. 261–271 (1996).
- [66] 24
DANCKWERTS, P. V.; *Significance of liquid film coefficients in gas absorption*; Ind. Eng. Chem., **43**, S. 1460 (1951); zitiert in [107, 97].

[67] 43, 43, 44, 45

DASKOPOULOS, P., HARRIS, C. K.; *Three dimensional CFD simulations of turbulent flow in baffled stirred tanks: an assessment of the current position*; S. 1–14 in [34] (1996).

[68] 43, 49, 82, 84, 240, 246

DECKER, S., SOMMERFELD, M.; *Calculation of particle suspension in agitated vessels with the EULER–LAGRANGE approach*; S. 71–82 in [34] (1996).

[69] 21

DECKWER, W. D.; *Bioreaktoren – derzeitiger Stand und erkennbare Entwicklungen*; Chem. Ing. Tech., **60**, 8, S. 583–590 (1988).

[70] 47

DECKWER, W.-D.; *Reaktormodelle für Gas/Flüssigkeits-Reaktionen*; Chem. Ing. Tech., **60**, 12, S. 1080–1081 (1988).

[71] 18, 23, 24, 232

DECKWER, W.-D.; *Reaktionstechnik in Blasensäulen*; Saller & Sauerländer, Frankfurt, Aarau (1985).

[72] 63

DEGLON, D. A., O’CONNOR, C. T., PANDIT, A. B.; *Efficacy of a spinning disc as a bubble break-up device*; Chem. Eng. Sci., **51**, 1, S. 59–70 (1998).

[73] 80, 81

DELNOIJ, E., KUIPERS, J. A. M., VAN SWAAIJ, W. P. M.; *Computational fluid dynamics applied to gas–liquid contactors*; Chem. Eng. Sci., **52**, 21/22, S. 3623–3638 (1997).

[74] 81

DELNOIJ, E., KUIPERS, J. A. M., VAN SWAAIJ, W. P. M.; *Dynamic simulation of gas–liquid two-phase flow: effect of column aspect ratio on the flow structure*; Chem. Eng. Sci., **52**, 21/22, S. 3759–3772 (1997).

[75] 81

DELNOIJ, E., LAMMERS, F. A., KUIPERS, J. A. M., VAN SWAAIJ, W. P. M.; *Dynamic simulation of dispersed gas–liquid two-phase flow using a discrete bubble model*; Chem. Eng. Sci., **52**, 9, S. 1429–1458 (1997).

[76] 74, 79

DERKSEN, J., VAN DEN AKKER, H. E. A.; *Large eddy simulations on the flow driven by a Rushton turbine*; AIChE J., **45**, 2, S. 209–221 (1999).

[77] 2, 3

DIALER, K., ONKEN, U., LESCHONSKI, K.; *Grundzüge der Verfahrenstechnik und Reaktionstechnik*; Carl Hanser, München (1984).

[78] 47, 51

DJEBBAR, M., ROUSTAN, M., LINE, A.; *Numerical Computation of Turbulent Gas-Liquid Dispersion in Mechanically Agitated Vessels*; Chem. Eng. Res. Des., **74**, 5, S. 492–498 (1996).

- [79] 47, 51, 63, 105, 236, 250

DJEBBAR, R., ROUSTAN, M., LINE, A., BOUAIFI, M.; *CFD mass transfer predictions in aerated agitated tanks equipped with axial impeller*; S. 239–246 in [35, vol. Multiphase Systems] (1997).

- [80] 37

DONATI, G., MARINI, L., MARZIANO, G. L.; *A comprehensive approach to chemical engineering computational problems*; Chem. Eng. Sci., **37**, S. 1265 (1982).

- [81] 44

DONG, L., JOHANSEN, T., ENGH, T. A.; *Flow induced by an impeller in an unbaffled tank—II: Numerical modelling*; Chem. Eng. Sci., **49**, 20, S. 3511–3518 (1994).

- [82] 36

DUNSTER, C. A., CHEESEMAN, K. H., MADDIX, S. P.; *The effect of oxidative stress on the production of the recombinant protein interferon-gamma, produced by Chinese hamster ovary cells in stirred batch culture*; Appl. Microbiol. Biotechnol., **48**, 2, S. 198–203 (1997).

- [83] 23

DURST, F., TSIKLARI, G. V., AFGAN, N. H. (ed.); *Two-Phase Momentum, Heat and Mass Transfer in Chemical Process and Engineering Systems*; Hemisphere Publ. Corp., Washington, DC (1979); zitiert in [71].

- [84] 69, 71, 73, 239

DURST, F.; *Grundlagen der Turbulenzmodellierung*; Vorlesung auf dem Kurzlehrgang Einführung in die Strömungsmechanik, 1.–5. März 1999, Lehrstuhl für Strömungsmechanik, Universität Erlangen (1996/1997); zitiert in [196].

- [85] 55

DYSTER, K. N., KOUTSAKOS, E., JAWORSKI, Z., NIENOW, A. W.; *An LDA study of the radial discharge velocities generated by a Rushton turbine ...*; Chem. Eng. Res. Des., **71**, 1, S. 11–23 (1993).

- [86] 15, 15

EDWARDS, M. F., BAKER, M. R.; *Mixing of liquids in stirred tanks*; S. 137–158 in [113] (1992).

- [87] 74, 75, 79, 79, 247

EGGELS, J. C. M.; *Direct and large-eddy simulation of turbulent fluid flow using the lattice-BOLTZMANN scheme*; Int. J. Heat and Fluid Flow, **17**, S. 307–323 (1996).

- [88] 21

EINSELE, A., FINN, R. K.; *Influence of gas flow rates and gas holdup on blending efficiency in stirred tanks*; Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev., **19**, S. 600–603 (1980); zitiert in [277].

- [89] 33

EL-ENSHASY, H. A.; *Optimization of glucose oxidase production and excretion by recombinant Aspergillus niger*; Dissertation, Techn. Univ. Braunschweig (1998).

- [90] 18
ELSTNER, F., ONKEN, U.; *Effect of liquid phase properties on mass transfer in gas/liquid dispersions*; Ger. Chem. Eng., **4**, S. 84–89 (1981).
- [91] 18
FISCHER, J.; *Detaillierte Untersuchung der Gasphaseneigenschaften begaster Rührkessel*; VDI-Fortschritt-Berichte, **3**: 281 (1992).
- [92] 246
FITZER, E., FRITZ, W.; *Technische Chemie – Einführung in die Chemische Reaktionstechnik*; 3. Aufl., Springer, Berlin, . . . (1989).
- [93] 228
FLORES CANDIA, J. L.; *Metabolic Flux Distribution, Modelling and Process Optimization of Xanthan Production*; VDI-Fortschritt-Berichte, **17**: 172 (1998).
- [94] 208
Fluent Inc, Lebanon, NH, USA: MixSim, Version 1.1; Softwareergänzung zu FLUENT.
- [95] 69, 70, 70, 71, 72, 77, 84, 84, 208, 237, 239, 248
FLUENT User's Guide, Release 4.4; Fluent Inc., Lebanon NH (1996).
- [96] 77, 84, 241
FLUENT User's Guide, Release 5.0; Fluent Inc., Lebanon NH (1998).
- [97] 60, 60, 62, 116, 146, 230, 236
FORTESCUE, G. E., PEARSON, J. R. A.; *On gas absorption into a turbulent liquid*; Chem. Eng. Sci., **22**, S. 1163–1167 (1967).
- [98] 36
FRANZÉN, C. J., ALBERS, E., NIKLASSON, C.; *Use of the inlet gas composition to control the respiratory quotient in microaerobic bioprocesses*; Chem. Eng. Sci., **51**, 13, S. 3391–3402 (1996).
- [99] 36
FRANZÉN, C. J., LIDÉN, G., NIKLASSON, C.; *An experimental guide to the relevant aeration rates in microaerobic bioprocesses*; S. 255–265 in [102] (1994).
- [100] 116
FRIEDRICH, R., PLATE, E. J.; (—); Int. J. Heat Mass Transfer, **26**, S. 521 (1983); zitiert in [265].
- [101] 30, 30, 35, 35, 205
FURUKAWA, K., HEINZLE, E., DUNN, I. J.; *Influence of oxygen on the growth of Saccharomyces cerevisiae in continuous culture*; Biotechnol. Bioeng., **25**, 10, S. 2293–2317 (1983).
- [102] 233, 247
GALINDO, E., RAMÍREZ, O. T. (ed.); *Advances in Bioprocess Engineering; 1st Int. Symp. on Bioproc. Eng., Cuernavaca, Mexico*; Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1994).

[103] 143, 243

GERHARTZ, W., ELVERS, B. (ed.); *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*; 5th ed., VCH, Weinheim (1989).

[104] 123, 240

GHOSE, T. K., FIECHTER, A., BLAKEBROUGH, N. (ed.); *Advances in Biochemical Engineering*, vol. 13; Springer, Berlin (1979).

[105] 73

GIBSON, M. M., LAUNDER, B. E.; *On the calculation of horizontal, turbulent, free shear flow under gravitational influence*; ASME J. Heat Transfer, **98**, S. 81–87 (1976); zitiert in [62].

[106] 48, 48, 72

GOSMAN, A. D., LEKAKOU, C., POLITIS, S., ISSA, R. I., LOONEY, M. K.; *Multidimensional modeling of turbulent two-phase flows in stirred vessels*; AIChE J., **38**, 12, S. 1946–1956 (1992).

[107] 24, 230, 236

GRASSMANN, P., WIDMER, F.; *Einführung in die thermische Verfahrenstechnik*; 2. Aufl., de Gruyter, Berlin (1974).

[108] 25

GRIFFITH, M.; *Mass transfer from drops and bubbles*; Chem. Eng. Sci., **12**, S. 198–213 (1960); zitiert in [118].

[109] 29

GRIOT, M., SANER, U., HEINZLE, E., DUNN, I. J., BOURNE, J. R.; *Experience with an oxygen-sensitive culture for fermentor scale-up*; S. 17–35 in [154] (1988).

[110] 205, 205

GUEST, J. R.; *Oxygen-regulated gene expression in Escherichia coli*; J. Gen. Microbiol., **138**, S. 2253–2263 (1992).

[111] 49

HAMILL, I. S., HAWKINS, I. R., JONES, I. P., LO, S. M., SŁAWSKI, B. A.; *The application of CFD-S-FLow3D to single and multi-phase flows in mixing vessels*; S. 150–160 in [309] (1995).

[112] 78

HARLOW, F. W., WELCH, J. E.; *Numerical calculation of time-dependent viscous incompressible flow of fluid with free surface*; Phys. Fluids, **8**, S. 2182–2189 (1965).

[113] 232, 238, 242

HARNBY, N., EDWARDS, M. F., NIENOW, A. W. (ed.); *Mixing in the Process Industries*; 2nd ed., Butterworth-Heinemann, Oxford (1992).

- [114] 41, 43, 44, 45, 235, 246

HARRIS, C. K., ROEKAERTS, D., ROSENDAL, F. J. J., BUITENDIJK, F. G. J., DASKOPOULOS, P., VREENEGOOR, A. J. N., WANG, H.; *Computational fluid dynamics for chemical reactor engineering*; Chem. Eng. Sci., **51**, 10, S. 1569–1594 (1996).

- [115] 205

HARRISON, D. E. F., PIRT, S. J.; *The influence of dissolved oxygen concentration on the respiration and glucose metabolism of Klebsiella aerogenes during growth*; J. gen. Microbiol., **46**, S. 193–211 (1967).

- [116] 44, 45

HARVEY III, A. D., LEE, C. K., ROGERS, S. E.; *Steady-state modeling and experimental measurement of a baffled impeller stirred tank*; AIChE J., **41**, 10, S. 2177–2186 (1995).

- [117] 41, 41

HARVEY, P. S., GREAVES, M.; *Turbulent flow in an agitated vessel; Part 2: Numerical simulation and model predictions*; Chem. Eng. Res. Des., **60**, S. 201–210 (1982); zitiert in [22, 160, 114].

- [118] 27, 234

HASHEM, M. A., SLATER, M. J.; *Enhancement of drop mass transfer coefficients in a liquid–liquid system using a rotating disc contactor*; S. 307–313 in [34] (1996).

- [119] 34

HEINZLE, E.; (*Persönliche Mitteilung*); Univ. Stuttgart, Adv. Course Quant. Physiol. Metab. Eng. Yeast (1997).

- [120] 33, 35, 247

HEMPEL, D. C.; *Grundlagen des Scale-up für biotechnologische Prozesse in Rührfermentern*; S. 77–123 in [135] (1987).

- [121] 27, 165

HENZLER, H. J.; *Verfahrenstechnische Auslegungsunterlagen für Rührbehälter als Fermenter*; Chem. Ing. Tech., **54**, 5, S. 461–476 (1982).

- [122] 28, 145

HENZLER, H.-J.; *Begasen höherviskoser Flüssigkeiten*; Chem. Ing. Tech., **52**, 8, S. 643–652 (1980).

- [123] 50

HENZLER, H.-J., BIEDERMANN, A.; *Modelluntersuchungen zur Partikelbeanspruchung in Reaktoren*; Chem. Ing. Tech., **68**, 12, S. 1546–1561 (1996).

- [124] 104

HESKETH, R. P., ETCHELLS, A. W., RUSSELL, T. W.; *Bubble breakage in pipeline flow*; Chem. Eng. Sci., **46**, 1, S. 1–9 (1991).

- [125] 24
HIGBIE, R.; *The rate of absorption of a pure gas into a still liquid during short periods of exposure*; Trans. Amer. Inst. Chem. Engrs., **31**, S. 365–389 (1935); zitiert in [27, 97, 107].
- [126] 105, 144
HINZE, J. O.; *Fundamentals of the hydrodynamic mechanism of splitting in dispersion process*; AIChE J., **1**, S. 289–295 (1955); zitiert in [79].
- [127] 68, 68
HINZE, J. O.; *Turbulence*; 2nd ed., McGraw-Hill, New York (1975).
- [128] 35
HIROSE, Y., SHIBAI, H.; *Effect of oxygen on amino acids fermentation*; S. 329–333 in [210, vol. I] (1981).
- [129] 20
HJORTH, S.; *Agitation in gassed magnetite suspensions*; S. 293–300 in [292] (1994).
- [130] 226, 236, 250
HO, C. S., OLDSHUE, J. Y. (ed.); *Biotechnology Processes – scale-up and mixing*; AIChE, New York, NY (1987).
- [131] 24
HO, C. S., STALKER, M. J., BADDOUR, R. F.; *The oxygen transfer coefficient in aerated stirred reactors*; S. 85–95 in [130] (1987).
- [132] 46, 55, 96
HÖFKEN, M., SCHÄFER, M., DURST, F.; *Detaillierte Untersuchung des Strömungsfeldes innerhalb eines Sechs-Blatt-Scheibenrührers*; Chem. Ing. Tech., **68**, 7, S. 803–809 (1996).
- [133] 39
HOLDEN, P. J., MANN, R.; *Turbulent 3-D mixing in a stirred vessel: Correlation of a networks-of-zones image reconstruction approach with pointwise measurements*; S. 167–179 in [34] (1996).
- [134] 10, 16, 26, 37, 49, 51, 115
HUMPHREY, A.; *Shake flask to fermentor: what have we learned?*; Biotechnol. Prog., **14**, 1, S. 3–7 (1998).
- [135] 235
Jahrbuch Biotechnologie 1986/87, Carl Hanser, München (1987)
- [136] 55
JAWORSKI, Z., NIENOW, A. W., KOUTSAKOS, E., DYSTER, K., BUJALSKI, W.; *An LDA study of turbulent flow in a baffled vessel agitated by a pitched blade turbine*; Chem. Eng. Res. Des., **96**, 7, S. 313–320 (1991).

[137] 46

JAWORSKI, Z., WYSZYNSKI, M. L., *et al.*; *Sliding mesh simulation of transitional, non-newtonian flow in a baffled, stirred tank*; Notes on Numerical Fluid Mechanics, **53**, “Computation of Three-Dimensional Flows”, S. 109–115 (1996).

[138] 42, 42, 72, 73, 237

JENNE, M., REUSS, M.; *Modellierung und Simulation der dreidimensionalen, turbulenten Strömung in Rührkesselreaktoren*; Chem. Ing. Tech., **68**, 3, S. 295–299 (1996).

[139] 42, 42, 48, 73

JENNE, M., REUSS, M.; *Fluid dynamic modelling and simulation of gas–liquid flow in baffled stirred tank reactors*; S. 201–208 in [35, vol. Multiphase systems] (1997).

[140] 42, 42, 48, 73

JENNE, M., SCHMALZRIEDT, S., REUSS, M.; *Modellierung und Simulation des Strömungsverhaltens begaster Rührkesselreaktoren*; Chem. Ing. Tech., **69**, 9, S. 1269 (1997).

[141] 50

JOSHI, J. B., ELIAS, C. B., PATOLE, M. S.; *Role of hydrodynamic shear in the cultivation of animal, plant and microbial cells*; Chem. Eng. J. & Biochem. Eng. J., **62**, S. B 121–B 142 (1996).

[142] 15, 15

JOSHI, J. B., PANDIT, A. B., SHARMA, M. M.; *Mechanically agitated gas–liquid reactors*; Chem. Eng. Sci., **37**, 6, S. 813–844 (1982).

[143] 42, 42, 73

JU, S. Y., MULVAHILL, T. M., PIKE, R. W.; *Three-dimensional turbulent flow in agitated vessels with a nonisotropic viscosity turbulence model*; Can. J. Chem. Eng., **68**, S. 3–16 (1990); zitiert in [138, 160, 214].

[144] 85

VAN KAMPEN, N. G.; *Stochastic Processes in Physics and Chemistry*; North-Holland, Amsterdam (1987); zitiert in [95].

[145] 204

KÄPPELI, O., FIECHTER, A.; *Biological method for the measurement of the maximum oxygen transfer rate of a bioreactor at definite conditions*; Biotechnol. Bioeng., **22**, S. 1509–1512 (1980).

[146] 33

KÄPPELI, O., FIECHTER, A.; *A convenient method for the determination of oxygen solubility in different solutions*; Biotechnol. Bioeng., **23**, 8, S. 1897–1901 (1981).

[147] 22, 84, 84

KARAMANEV, D. G.; *Rise of gas bubbles in quiescent liquids*; AIChE J., **40**, 8, S. 1418–1421 (1994).

- [148] 22, 82, 84, 84, 108
KARAMANEV, D. G., NIKOLOV, L. N.; *Free rising spheres do not obey Newton's law for free settling*; AIChE J., **38**, 11, S. 1843–1846 (1992).
- [149] 27
KAWASE, Y., HALARD, B., MOO-YOUNG, M.; *Liquid-phase mass transfer coefficients in bioreactors*; Biotechnol. Bioeng., **39**, 11, S. 1133–1140 (1992).
- [150] 51, 61, 109, 145, 160
KAWASE, Y., MOO-YOUNG, M.; *Mathematical models for design of bioreactors: applications of Kolmogoroff's theory of isotropic turbulence*; Chem. Eng. J., **43**, 1, S. B19–B41 (1990).
- [151] 204
KEITEL, G., ONKEN, U.; *Errors in the determination of mass transfer in gas–liquid dispersions*; Chem. Eng. Sci., **36**, 12, S. 1927–1932 (1981).
- [152] 38
KHANG, S. J., LEVENSPIEL, O.; *New scale-up and design method for stirred agitated batch mixing vessels*; Chem. Eng. Sci., **31**, S. 569–577 (1976); zitiert in [256].
- [153] 177
KHARE, A. S., NIRANJAN, K.; *Impeller-agitated aerobic reactor: the influence of tiny bubbles on gas hold-up and mass transfer in highly viscous liquids*; Chem. Eng. Sci., **50**, 7, S. 1091–1105 (1995).
- [154] 228, 234, 244, 250, 250, 252
KING, R. (ed.); *Bioreactor Fluid Dynamics*; Elsevier, London (1988).
- [155] 226, 246
KING, R. (ed.); *Fluid Mechanics of Mixing*; 7th European Conference on Mixing, Brugge, Belgien, 18–20 Sept. 1991; Kluwer, Dordrecht (1992).
- [156] 14
KING, R.; *Mechanical aspects of mixing*; S. 250–285 in [113] (1992).
- [157] 60, 62, 116
KOMORI, S., NAGAOSA, R., MURAKAMI, Y.; *Mass transfer into a turbulent liquid across the zero-shear gas–liquid interface*; AIChE J., **36**, 6, S. 957–960 (1990).
- [158] 126
KÖNEKE, R., COMTE, A., JÜRGENS, H., KOHLS, O., LAM, H., SCHEPER, T.; *Faseroptische Sauerstoffsensoren für Biotechnologie, Umwelt- und Lebensmitteltechnik*; Chem. Ing. Tech., **70**, 12, S. 1611 (1998).
- [159] 214
KOSTOV, Y., COMTE, A., SCHEPER, T.; *Solid state luminescence phase-shift oxygen sensor for biotechnolgy*; Chem. Biochem. Eng. Q., **12**, 4, S. 201–205 (1998).

- [160] [42](#), [43](#), [235](#), [237](#), [247](#)
KRESTA, S. M., WOOD, P. E.; *Prediction of the three-dimensional turbulent flow in stirred tanks*; AIChE J., **37**, 3, S. 448–460 (1991).
- [161] [55](#), [59](#), [59](#)
KRESTA, S. M., WOOD, P. E.; *The flow field produced by a pitched blade turbine: characterization of the turbulence and estimation of the dissipation rate*; Chem. Eng. Sci., **48**, 10, S. 1761–1774 (1993).
- [162] [51](#), [54](#), [61](#), [62](#)
LAMONT, J. C., SCOTT, D. S.; *An eddy cell model of mass transfer into the surface of a turbulent liquid*; AIChE J., **16**, 4, S. 513–519 (1970).
- [163] [54](#), [57](#)
LANDAU, L. D., LIFSHITZ, E. M.; *Fluid Mechanics*; Pergamon, Oxford (1975); zitiert in [\[197\]](#).
- [164] [30](#)
LARSSON, G., ENFORS, S. O.; *Influence of oxygen starvation on the respiratory capacity of *Penicillium chrysogenum**; Appl. Microbiol. Biotechnol., **21**, 3-4, S. 228–233 (1985).
- [165] [30](#), [32](#), [33](#), [34](#)
LARSSON, G., ENFORS, S. O.; *Studies of insufficient mixing in bioreactors: effects of limiting oxygen concentrations and short term oxygen starvation on *Penicillium chrysogenum**; Bioprocess Eng., **3**, 3, S. 123–127 (1988).
- [166] [30](#)
LARSSON, G., ENFORS, S. O.; *Kinetics of *Escherichia coli* hydrogen production during short term repeated aerobic-anaerobic fluctuations*; Bioprocess Eng., **9**, 4, S. 167–72 (1993).
- [167] [30](#), [30](#)
LARSSON, G., TORNKVIST, M., WERNERSSON, E. S., TRÄGÅRDH, C., NOORMAN, H., ENFORS, S. O.; *Substrate gradients in bioreactors: origin and consequences*; Bioprocess Eng., **14**, 6, S. 281–289 (1996).
- [168] [30](#), [229](#)
LAUFHÜTTE, H. D., MERSMANN, A.; *Die lokale Energiedissipation im turbulent gerührten Fluid und ihre Bedeutung für die verfahrenstechnische Auslegung von Rührwerken*; Chem. Ing. Tech., **57**, 12, S. 1104–1105 (1985).
- [169] [70](#), [71](#), [73](#)
LAUNDER, B. E., SHARMA, B. I.; *Application of the energy dissipation model of turbulence to the calculation of flow near a spinning disc*; Lett. Heat Mass Transfer, **1**, S. 131–138 (1974); zitiert in [\[319, 84\]](#).
- [170] [69](#), [71](#), [76](#)
LAUNDER, B. E., SPALDING, D. B.; *The numerical computation of turbulent flows*; Comp. Meth. Appl. Mech. Eng., **3**, S. 269–289 (1974); zitiert in [\[62, 95\]](#).

- [171] 19, 46
LEE, K. C., NG, K., YIANNESKIS, M.; *Sliding mesh predictions of the flows around RUSTHON impellers*; S. 47–58 in [34] (1996).
- [172] 123
LEE, Y. H., TSAO, G. T.; *Dissolved Oxygen Electrodes*; S. 35–86 in [104] (1979).
- [173] 84
LEGG, B. J., RAUPACH, M. R.; *MARKOV-chain simulation of particle dispersion in inhomogeneous flows: The mean drift velocity induced by a gradient in EULERian velocity variance*; Bound. Layer Met., **24**, S. 3–13 (1982); zitiert in [68].
- [174] 251
LEWIS, R. W., MORGAN, K., JOHNSON, J. A., SMITH, R. (ed.); *Computational Techniques in Heat Transfer*; Pineridge Press, Swansea (1985); zitiert in [214].
- [175] 35
LIN, A. A., MILLER, W. M.; *CHO cell responses to low oxygen: regulation of oxygen consumption and sensitization to oxidative stress*; Biotechnol. Bioeng., **40**, 4, S. 505–516 (1992).
- [176] 203
LINEK, V., MOUCHA, T., DOUSOVA, M., SINKULE, J.; *Measurement of kLa by dynamic pressure method in pilot-plant fermentor*; Biotechnol. Bioeng., **43**, 6, S. 477–482 (1994).
- [177] 204
LINEK, V., SINKULE, J., BENES, P.; *Critical assessment of the dynamic double-response method for measuring k_{la} : experimental elimination of dispersion effects*; Chem. Eng. Sci., **47**, 15/16, S. 3885–3894 (1992).
- [178] 23, 26, 203
LINEK, V., VACEK, V.; *Chemical engineering use of catalyzed sulfite oxidation kinetics for the determination of mass transfer characteristics of gas–liquid contactors*; Chem. Eng. Sci., **36**, 11, S. 1747–1768 (1981).
- [179] 204
LINEK, V., VACEK, V.; *Consistency of steady-state and dynamic methods of k_{la} determination in gas–liquid dispersions*; Chem. Eng. Sci., **37**, 9, S. 1425–1429 (1982).
- [180] 34
LONGMUIR, I. S.; (—); Biochem. J., **57**, S. 81–87 (1954); zitiert in [228].
- [181] 208
LUO, J. A., GOSMAN, A. D., ISSA, R. I., MIDDLETON, J. C., FITZGERALD, M. K.; *Full flow field computation of mixing in baffled stirred vessels*; Chem. Eng. Res. Des., **71**, S. 342–344 (1993).

- [182] 45
LUO, J. Y., ISSA, R. I., GOSMAN, A. D.; *Prediction of impeller induced flows in mixing vessels using multiple frames of reference*; S. 549–556 in [292] (1994).
- [183] 20
LUONG, H. T., VOLESKY, B.; *Mechanical power requirements of gas-liquid agitated systems*; AIChE J., **25**, 5, S. 893–895 (1979).
- [184] 17, 18, 18, 144
MACHON, V., PACEK, A. W., NIENOW, A. W.; *Bubble sizes in electrolyte and alcohol solutions in a turbulent stirred vessel*; Chem. Eng. Res. Des., **75**, S. 339–348 (1997).
- [185] 37
MACHON, V., VLCEK, J., JAHODA, M.; *Influence of liquid properties on mass transfer through the free surface in stirred vessel*; S. 75–80 in [35, vol. Recent advances in mixing] (1997).
- [186] 46
MAHMOUDI, S. M. S., RUTHERFORD, K., LEE, K. C., YIANNESKIS, M.; *A study of the turbulence characteristics of dual-impeller mixing systems using LDA*; S. 137–145 in [292] (1994).
- [187] 15, 37
MANFREDINI, R., CAVALLERA, V., MARINI, L., DONATI, G.; *Mixing and oxygen transfer in conventional stirred fermentors*; Biotechnol. Bioeng., **25**, 12, S. 3115–3131 (1983).
- [188] 27
MANN, R., WANG, M., DICKIN, F. J., DYAKOWSKI, T., HOLDEN, P. J., FORREST, A. E., EDWARDS, R. B.; *Resistance tomography imaging of stirred vessel mixing at plant scale*; S. 155–166 in [34] (1996).
- [189] 39
MANN, R., YING, P.; *Application of a 3-D networks-of-zones mixing model to a stirred vessel*; S. 317–324 in [292] (1994).
- [190] 80
MANNINEN, M., TAIVASSALO, V., KALLIO, S.; *On the mixture model for multiphase flow*; VIT publications, Technical Research Centre of Finland (1996); zitiert in [96].
- [191] 41, 44, 51
MANNING, A. J., MANN, R., COLLEY, M.; *CFD model of the flow from a heated impeller in a stirred vessel*; S. 95–105 in [34] (1996).
- [192] 33
MARIC, V., EINSELE, A.; *The influence of low dissolved oxygen levels in fermentors on ethanol production by Candida tropicalis*; S. 335–338 in [210, vol. I] (1981).

[193] 27, 148

MARTIN, T.; *Gas dispersion with radial and hydrofoil impellers in fluids with different coalescence characteristics*; PhD thesis, University of Birmingham, UK (1995).

[194] 20

MARTIN, T., MCFARLANE, C. M., NIENOW, A. W.; *The influence of liquid properties and impeller type on bubble coalescence behaviour and mass transfer in sparged, agitated reactors*; S. 57–64 in [292] (1994).

[195] 39

McKEE, S. L., WILLIAMS, R. A., DICKIN, F. J., MANN, R., BRINKEL, J., YING, P., BOXMAN, A., McGRATH, G.; *Measurement of concentration profiles and mixing kinetics in stirred tanks using a resistance tomographic technique*; S. 9–16 in [292] (1994).

[196] 232

MEDRONHO, R.; *(Persönliche Mitteilung)*; GBF Braunschweig (1999).

[197] 239

MERCHUK, J. C.; *Why use airlift bioreactors?*; Trends Biotechnol., **8**, 3, S. 66–71 (1990).

[198] 200

MERCHUK, J. C., YONA, S., SIEGEL, M. H., ZVI, A. B.; *On the first-order approximation to the response of dissolved oxygen electrodes for dynamic kLa estimation*; Biotechnol. Bioeng., **35**, 11, S. 1161–1163 (1990).

[199] 21

MERSMANN, A., SCHNEIDER, G., VOIT, H., WENZIG, E.; *Selection and design of aerobic bioreactors*; Chem. Eng. Technol., **13**, 6, S. 357–370 (1990).

[200] 20

MIDDLETON, J. C.; *Gas–liquid dispersion and mixing*; S. 322–363 in [113] (1992).

[201] 41, 43, 50, 50

MIDDLETON, J. C., PIERCE, F., LYNCH, P. M.; *Computations of flow fields and complex reaction yield in turbulent stirred reactors and comparison with experimental data*; Chem. Eng. Res. Des., **64**, S. 18–22 (1986).

[202] 63

MIDOUX, N., CHARPENTIER, J.-C.; *Mechanically agitated gas-liquid reactors. Part 1. Hydrodynamics*; Int. Chem. Eng., **24**, 2, S. 249–287 (1984).

[203] 23, 105

MIDOUX, N., CHARPENTIER, J.-C.; *Mechanically agitated gas-liquid reactors. Part 2. Interfacial area*; Int. Chem. Eng., **24**, 3, S. 452–481 (1984).

[204] 203

MIGNONE, C. F.; *The agitation-step method for kLa measurement*; Chem. Eng. Sci., **45**, 6, S. 1583–1587 (1990).

[205] 26, 115, 228

MILLER, D. N.; *Scale-up of agitated vessels gas-liquid mass transfer*; AIChE J., **20**, 3, S. 445–453 (1974).

[206] 36

MILLER, W. M., WILKE, C. R., BLANCH, H. W.; *Effects of dissolved oxygen concentration on hybridoma growth and metabolism in continuous culture*; J. Cell. Physiol., **132**, S. 524–530 (1987).

[207] 143

MINER, C. S., DALTON, N. N.; *Glycerol*; Reinhold Pub. Corp., New York (1953); zitiert in [103].

[208] 29, 29

MOES, J.; *Untersuchung von Mischphänomenen mit Hilfe von Bacillus subtilis*; Dissertation, ETH Zürich (1985).

[209] 29, 34

MOES, J., GRIOT, M., KELLER, J., HEINZLE, E., DUNN, I. J., BOURNE, J. R.; *A microbial culture with oxygen-sensitive product distribution as a potential tool for characterizing bioreactor oxygen transport*; Biotechnol. Bioeng., **27**, 4, S. 482–489 (1985).

[210] 236, 241

MOO-YOUNG, M., ROBINS, C. W., VEZINA, C. (ed.); *Advances in Biotechnology*; Pergamon, Willowdale, Ont. (1981).

[211] 129, 252

MORENO-BONDI, M. C., WOLFBEIS, O. S., LEINER, M. J. P., SCHAFFAR, B. P. H.; *Oxygen optrode for use in a fiber-optic glucose biosensor*; Anal. Chem., **62**, 21, S. 2377–2380 (1990).

[212] 84

MORSI, S. A., ALEXANDER, A. J.; *An investigation of particle trajectories in two-phase flow systems*; J. Fluid Mech., **55**, 2, S. 193–208 (1972).

[213] 123

MORTIMER, C. E.; *Chemie – Das Basiswissen der Chemie*; 5. Aufl., Thieme, Stuttgart (1987).

[214] 45, 48, 72, 237, 240, 246, 248, 251

MORUD, K. E., HJERTAGER, B. H.; *LDA measurements and CFD modeling of gas-liquid flow in a stirred vessel*; Chem. Eng. Sci., **51**, 2, S. 233–249 (1996).

[215] 27

MOTARJEMI, M.; *Mass transfer from very small bubbles – the optimum bubble size for aeration*; Chem. Eng. Sci., **33**, S. 1415–1423 (1978).

[216] 60, 62, 145

MÜNSTERER, T., JÄHNE, B.; *LIF measurements of concentration profiles in the aqueous mass boundary*; Experiments in Fluids, **25**, S. 190–196 (1998).

[217] 208

MURTHY, J. Y., MATHUR, S. R., CHOUDHURY, D.; *CFD simulation of flows in stirred tank reactors using a sliding mesh technique*; S. 341–348 in [292] (1994).

[218] 205

NEIJSEL, O. M., TEIXEIRA DE MATTOS, M. J.; *The energetics of bacterial growth: a reassessment (MicroReview)*; Mol. Microbiol., **13**, 2, S. 179–182 (1994).

[219] 46

NG, K., FENTIMAN, N. J., LEE, K. C., YIANNESKIS, M.; *Assessment of sliding mesh CFD predictions and LDA measurements of the flow in a tank stirred by a Rushton impeller*; Chem. Eng. Res. Des., **76**, S. 737–747 (1998).

[220] 145

NG, W. Y., WALKLEY, J.; *Diffusion of gases in liquids: The constant size bubble method*; Canadian J. Chem., **47**, S. 1075–1077 (1969); zitiert in [312].

[221] 19, 27, 28, 199

NIENOW, A. W.; *Gas dispersion performance in fermentor operation*; Chem. Eng. Prog., **86**, 2, S. 61–71 (1990).

[222] 225, 244, 246, 248, 253

NIENOW, A. W. (ed.); *Bioreactor and Bioprocess Fluid Dynamics*; Mechanical Engineering Publications, London (1993).

[223] 55

NIENOW, A. W., DYSTER, K. N.; *An LDA study of the turbulent flow field in a baffled vessel agitated by an axial, down-pumping hydrofoil impeller*; Can. J. Chem. Eng., **74**, 2, S. 3–15 (1996).

[224] 28

NIENOW, A. W., LIU, H., WANG, H., ALLSFORD, K. V., CRONIN, D., HUDCOVA, V.; *The use of large ring spargers to improve the performance of fermentors agitated by single and multiple standard Rushton turbines*; S. 159–177 in [154] (1988).

[225] 41, 47

NOORMAN, H., MORUD, K., HJERTÄGER, B., TRÄGÅRDH, C., LARSSON, G., ENFORS, S.-O.; *CFD modelling and verification of flow and conversion in a 1 m³ bioreactor*; S. 241–258 in [222] (1993).

[226] 57, 166

OGAWA, K., KURODA, C.; *A new scale-up rule and evaluation of traditional rules from a viewpoint of energy spectrum function*; S. 95–101 in [309] (1995).

- [227] 51
OKAMOTO, Y., NISHIKAWA, M., HASHIMOTO, K.; *Energy dissipation rate distribution in mixing vessels and its effects on liquid-liquid dispersion and solid-liquid mass transfer*; Int. Chem. Eng., **21**, S. 88–94 (1981); zitiert in [315].
- [228] 34, 38, 62, 240, 247
OOSTERHUIS, N. M. G.; *Scale-up of bioreactors—a scale-down approach*; Dissertation, Delft University of Technology (1984).
- [229] 30, 38
OOSTERHUIS, N. M. G., KOSSEN, N. W. F.; *Dissolved oxygen concentration profiles in a production-scale bioreactor*; Biotechnol. Bioeng., **26**, 5, S. 546–550 (1984).
- [230] 30, 31, 31, 31
OOSTERHUIS, N. M. G., KOSSEN, N. W. F., OLIVIER, A. P. C., SCHENK, E. S.; *Scale-down and optimization studies of the gluconic acid fermentation by Gluconobacter oxydans*; Biotechnol. Bioeng., **27**, 5, S. 711–720 (1985).
- [231] 32, 32, 35
OSBEK, B., LOVITT, R. W.; *Scale-down fermentations using E. coli: mathematical modeling and simulation studies*; S. 14–16 in [4] (1994).
- [232] 35
ÖZTURK, S. S., PALSSON, Ø. B.; *Effects of dissolved oxygen on hybridoma cell growth, metabolism, and antibody production kinetics in continuous culture*; Biotechnol. Prog., **6**, S. 437–446 (1990).
- [233] 21
PANDIT, A. B., JOSHI, J. B.; *Mixing in mechanically agitated gas–liquid contactors, bubble columns and modified bubble columns*; Chem. Eng. Sci., **38**, 8, S. 1189–1215 (1983); zitiert in [277].
- [234] 204
PANJA, N. C., PHANESWARARAO, D.; *Volumetric mass transfer coefficients from desorption data*; Chem. Eng. Res. Des., **72**, 9, S. 633–638 (1994).
- [235] 50, 56
PAPOUTSAKIS, E. T.; *Fluid-mechanical damage of animal cells in bioreactors*; Trends Biotechnol., **9**, 12, S. 427–437 (1991).
- [236] 17, 63
PARTHASARATHY, R., AHMED, N.; *Sauter mean and maximum bubble diameters in aerated stirred vessels*; Chem. Eng. Res. Des., **72**, S. 565–572 (1994).
- [237] 63, 63
PARTHASARATHY, R., JAMESON, G. J., AHMED, N.; *Bubble breakup in stirred vessels – predicting the Sauter mean diameter*; Chem. Eng. Res. Des., **69**, S. 295–301 (1991).

- [238] 13
PATAT, F., KIRCHNER, K.; *Praktikum der Technischen Chemie*; 2. Aufl., de Gruyter & Co., Berlin (1968); zitiert in [92].
- [239] 49, 49
PATTERSON, G. K.; *Measurements and modelling of flow in gas sparged, agitated vessels*; S. 47–54 in [155] (1992).
- [240] 25
PEREZ, J. F., SANDALL, O. C.; *Gas absorption by non-newtonian fluids in agitated vessels*; AIChE J., **20**, 4, S. 770–775 (1974).
- [241] 77
PERIČ, M.; *A finite volume method for the prediction of three-dimensional fluid flow in complex ducts*; PhD thesis, University of London (1985); zitiert in [319].
- [242] 43
PERICLEOUS, K. A., PATEL, M. K.; *The source-sink approach in the modelling of stirred reactors*; Phys. Chem. Hydrodynam., **9**, S. 279 (1987); zitiert in [114, 214].
- [243] 43
PERICLEOUS, K. A., PATEL, M. K.; *The modelling of tangential and axial agitators in chemical reactors*; Phys. Chem. Hydrodynam., **8**, S. 105–123 (1987); zitiert in [68].
- [244] 20
PINELLI, D., NOCENTINI, M., MAGELLI, F.; *Hold-up in low viscosity gas-liquid systems stirred with multiple impellers. Comparison of different agitators types and sets*; S. 81–88 in [292] (1994).
- [245] 43
PLACEK, J., TAVLARIDES, L. L., SMITH, G. W., FORT, I.; *Turbulent flows in stirred tanks; Part 2: A two-scale model of turbulence*; AIChE J., **32**, S. 1771–1785 (1986); zitiert in [22].
- [246] 37
PONS, M. N., CORRIOU, J. P., BELFARES, L.; *Simulation of multiturbine fermentors for control strategy scale-up*; S. 425–431 in [222] (1993).
- [247] 149, 151, 151, 151
POPOVIC, M., PAPALEXIOU, A., REUSS, M.; *Gas residence time distribution in stirred tank bioreactors*; Chem. Eng. Sci., **38**, 12, S. 2015–2025 (1983).
- [248] 69
PRANDTL, L.; *Berichte über Untersuchungen zur ausgebildeten Turbulenz*; „ZAMM“, **5**, S. 136 (1925); zitiert in [62].
- [249] 31
PURGSTALLER, A., MOSER, A.; *Mixing-modeling of a two-compartment bioreactor for scale-down approaches*; Chem. Biochem. Eng. Q., **1**, 4, S. 157–161 (1987).

[250] 26, 203

RAINER, B. W.; *Determination methods of the volumetric oxygen transfer coefficient kLa in bioreactors*; Chem. Biochem. Eng. Q., **4**, 4, S. 185–196 (1990).

[251] 15, 43, 50

RANADE, V. V., BOURNE, J. R., JOSHI, J. B.; *Fluid mechanics and blending in agitated tanks*; Chem. Eng. Sci., **46**, 8, S. 1883–1893 (1991).

[252] 45, 45, 115

RANADE, V. V., DOMMETI, S. M. S.; *Computational snapshot of flow generated by axial impellers in baffled stirred vessels*; Chem. Eng. Res. Des., **74**, 5, S. 476–484 (1996).

[253] 43

RANADE, V. V., JOSHI, J. B.; *Flow generated by disc turbine*; Chem. Eng. Res. Des., **68**, S. 19–50 (1990); zitiert in [22, 87, 160].

[254] 226, 247

REHM, H.-J., REED, G., PÜHLER, A., STADLER, P. (ed.); *Biotechnology*; 2nd ed., VCH, Weinheim (1993).

[255] 15, 29, 38, 64, 247

REUSS, M.; *Mathematical models of coupled oxygen transfer and microbial kinetics in bioreactors*; IFAC Conf. Modelling and Control of Biotechnical Processes, Helsinki, Finland (1982).

[256] 21, 64, 226, 229, 238

REUSS, M., BAJPAI, R.; *Stirred Tank Models*; S. 299–348 in [254, vol. 4] (1993).

[257] 64

REUSS, M., BAJPAI, R. K., BERKE, W.; *Effective oxygen consumption rates in fermentation broths with filamentous organisms*; Chem. Tech. Biotechnol., **32**, S. 81–91 (1982); zitiert in [255].

[258] 38

REUSS, M., BRAMMER, U.; *Influence of substrate distribution on productivities in computer controlled baker's yeast production*; "Modelling Contr. Biotechnol. Process.", 1. IFAC-Symp., S. 145–150 (1986).

[259] 41, 47, 51

REUSS, M., SCHMALZRIEDT, S., JENNE, M.; *Structured modelling of bioreactors*; S. 207–215 in [102] (1994).

[260] 201

REUTER, M.; *Regelungstechnik für Ingenieure*; 8. ed., Vieweg & Sohn, Braunschweig (1991).

[261] 13

REVILL, B. K.; *Pumping capacity of disc turbine agitators*; 4th Eur. Conf. on Mixing, '82, Noordwijkerhout (1982); zitiert in [120, 228].

[262] 68

REYNOLDS, O.; *On the dynamical theory of incompressible viscous fluids and the determination of the criterion*; Phil. Trans. Proc. Roy. Soc., **A**, **186**, S. 123–64 (1895); zitiert in [62].

[263] 5, 26, 26, 203, 204, 249

VAN'T RIET, K.; *Review of measuring methods and results in nonviscous gas-liquid mass transfer in stirred vessels*; Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev., **18**, 3, S. 357–364 (1979).

[264] 19, 19, 19

VAN'T RIET, K., SMITH, J. M.; *The behaviour of gas-liquid mixtures near Rushton turbine blades*; Chem. Eng. Sci., **28**, S. 1031–1037 (1973).

[265] 62, 233

RISSE, F. U.; *Messung des Stoffübergangs von Sauerstoff aus Luft in turbulent strömende Flüssigkeiten mit ebener Phasengrenzfläche*; Dissertation, Universität Dortmund (1984).

[266] 62, 146, 229

RISSE, F. U., WEILAND, P., ONKEN, U.; *Measurement of mass transfer of oxygen from air into turbulently flowing liquids with a planar interface*; Ger. Chem. Eng., **9**, 2, S. 107–117 (1986).

[267] 37, 39, 250

RIZZI, M., THEOBALD, U., BALTES, M., REUSS, M.; *Structured modeling of bioreactor systems*; 2nd Int. Symp. Biochem. Eng. Stuttgart (1990).

[268] 206

RIZZI, M., THEOBALD, U., BALTES, M., REUSS, M.; *Measurements and modelling of the dynamic glucose response of Saccharomyces cerevisiae in the time window of mixing times*; S. 401–412 in [222] (1993).

[269] 70

RODI, W.; *Turbulence Models and their Application in Hydraulics—A state of the art review*; 2nd ed., Int. Ass. Hydraul. Res., Delft (1984); zitiert in [21, 95, 331].

[270] 70

RODI, W.; *Examples of turbulence-model applications*; Turbulence models and their Applications, **2**, Paris, S. 295–401 (1984); zitiert in [214].

[271] 20, 226

ROUSAR, I., VAN DEN AKKER, H. E. A.; *LDA measurements of liquid velocities in sparged agitated tanks with single and multiple RUSHTON turbines*; S. 89–96 in [292] (1994).

[272] 145

RÜFFER, H.-M.; *Untersuchungen zur Charakterisierung der Fluidodynamik in Bioreaktoren*; Dissertation, Universität Hannover (1990).

- [273] 15
RUSZKOWSKI, S.; *A rational method for measuring blending performance, and comparison of different impeller types*; S. 283–291 in [292] (1994).
- [274] 61
SANO, Y., YAMAGUCHI, N., ADACHI, T.; *Mass transfer coefficients for suspended particles in agitated vessels and bubble columns*; J. Chem. Eng. Japan, **7**, S. 255 (1974); zitiert in [57].
- [275] 46, 55, 63, 96
SCHÄFER, M., HÖFKEN, M., DURST, F.; *Detailed LDV measurements for visualization of the flow field within a stirred-tank reactor equipped with a rushton turbine*; Chem. Eng. Res. Des., **75**, 11, S. 729–736 (1997).
- [276] 204
SCHAFTLEIN, R. W., RUSSELL, T. W. F.; (—); Ind. Eng. Chem., **60**, S. 12 (1968); zitiert in [263].
- [277] 23, 26, 27, 165, 203, 232, 245, 254
SCHLÜTER, V.; *Charakterisierung und Maßstabsübertragung von Biorührreaktoren*; Dissertation, Techn. Univ. Braunschweig (1992).
- [278] 27, 27
SCHLÜTER, V., DECKWER, W. D.; *Gas/liquid mass transfer in stirred vessels*; Chem. Eng. Sci., **47**, 9–11, S. 2357–2362 (1992).
- [279] 41, 41, 47, 50
SCHMALZRIEDT, S., JENNE, M., REUSS, M.; *Modelling of stirred tank bioreactors*; 6th Int. Conference on Computer Applications in Biotechnology, Garmisch-Partenkirchen, 14.-17. Mai 1995. (1995).
- [280] 50, 51
SCHMALZRIEDT, S., REUSS, M.; *Application of computational fluid dynamics to simulations of mixing and biotechnical conversion processes in stirred tank bioreactors*; S. 171–178 in [35, vol. Recent advances in mixing] (1997).
- [281] 43
SCHOENMAKERS, J. H. A., WIJERS, J. G., THOENES, D.; *Simplified stirrer modelling for the prediction of time averaged hydrodynamics in stirred vessels*; S. 327–337 in [34] (1996).
- [282] 23, 26, 58, 203
SCHÜGERL, K., LÜBBERT, A., KORTE, T., DIEKMANN, J.; *Meßtechnik zur Charakterisierung von Gas/Flüssigkeits-Reaktoren*; Chem. Ing. Tech., **57**, 8, S. 641–650 (1985).
- [283] 177, 204
SCHUMPE, A.; *Zur Ermittlung von Stoffübergangszahlen auf der Basis von Gelöstsauerstoff-Messungen*; Chem. Ing. Tech., **57**, 6, S. 501–505 (1985).

- [284] 33, 140, 146
SCHUMPE, A.; *The estimation of gas solubilities in salt solutions*; Chem. Eng. Sci., **48**, 1, S. 153–158 (1993).
- [285] 33, 140, 146
SCHUMPE, A., QUICKER, G., DECKWER, W. D.; *Gas solubilities in microbial culture media*; Adv. Biochem. Eng., **24**, S. 1–38 (1982).
- [286] 105
SEVIK, M., PARK, S. H.; *The splitting of drops and bubbles by turbulent fluid flow*; Trans. Am. Soc. Mech. Eng., **95**, S. 53–60 (1973); zitiert in [79].
- [287] 25
SHERWOOD, T. K., PIGFORD, R. L., WILKE, C. R.; *Mass Transfer*; McGraw–Hill, New York (1975); zitiert in [311].
- [288] 38
SINCLAIR, C. G., BROWN, D. E.; (—); Biotechnol. Bioeng., **12**, S. 1001–1017 (1970); zitiert in [267].
- [289] 37
SINGH, V., FUCHS, R., CONSTANTINIDES, A.; *A new method for fermentor scale-up incorporating both mixing and mass transfer effects – I. Theoretical basis*; S. 200–214 in [130] (1987).
- [290] 37
SINGH, V., FUCHS, R., CONSTANTINIDES, A.; *Use of mass transfer and mixing correlations for the modeling of oxygen transfer in stirred tank fermentors*; S. 79–93 in [154] (1988).
- [291] 8, 15
SMIT, L.; *An alternative scale procedure for stirred vessels*; S. 309–315 in [292] (1994).
- [292] 225, 226, 227, 229, 230, 236, 241, 241, 241, 242, 242, 244, 246, 248, 249, 250, 251, 251, 253, 253
SMITH, J. M. (ed.); *Mixing 8; 8th European Conference on Mixing*, Cambridge University, 21–23 Sept. 1994; Inst. Chem. Engineers, Rugby (1994).
- [293] 41, 50
SMITH, T. J., RIELLY, C. D.; *Predictions of the flow in fermentors and the implications for scale-up*; S. 431–441 in [154] (1988).
- [294] 81
SOKOLICHIN, A., EIGENBERGER, G.; *Dynamic numerical simulation of gas–liquid two-phase flows – Euler/Euler versus Euler/Lagrange*; Chem. Eng. Sci., **52**, 4, S. 611–626 (1997).
- [295] 99
SOMMERFELD, M.; (Persönliche Mitteilung); GVC-Fachausschußsitzung „Mehr“-pha“-sen“-strö“-mun“-gen“, Wernigerode (2001).

- [296] 81
SPALDING, D. B.; *Computer simulation of two-phase flows, with special reference to nuclear-reactor systems*; S. 1-44 in [174] (1985); zitiert in [214].
- [297] 81
SPELT, P. D. M., BIESHEUVEL, A.; *On the motion of gas bubbles in homogeneous isotropic turbulence*; J. Fluid Mech., **336**, S. 221–244 (1997).
- [298] 73
SPEZIALE, C. G.; *On nonlinear $k-l$ and $k-\epsilon$ models of turbulence*; J. Fluid. Mech., **178**, S. 459–475 (1987); zitiert in [62].
- [299] 71, 82, 82
STURESSON, C., RASMUSON, A.; *Complete suspension of solid particles in stirred vessels*; S. 357–364 in [292] (1994).
- [300] 30, 31
SUPHANTHARIKA, M., ISON, A. P., LILLY, M. D.; *The effect of cycling dissolved oxygen tension on the synthesis of the antibiotic diffcicidin by Bacillus subtilis*; Bioprocess Eng., **12**, 4, S. 181–186 (1995).
- [301] 22, 23, 27
SVIHILA, C. K., BERSON, R. E., HANLEY, T. R.; *Modeling mass transfer and gas phase mixing in the reactive absorption of ozone*; S. 227–234 in [292] (1994).
- [302] 23
SVIHILA, C. K., BERSON, R. E., HANLEY, T. R.; *Gas-liquid mixing and mass transfer in tall tanks*; S. 161–165 in [309] (1995).
- [303] 30, 30, 31, 31, 227, 227, 227
SWEERE, A. P. J., MESTERS, J. R., JANSE, L., LUYBEN, K. C. A. M., KOSSEN, N. W. F.; *Experimental simulation of oxygen profiles and their influence on baker's yeast production: I. One-fermentor system; II: Two-fermentor system*; Biotechnol. Bioeng., **31**, 6, S. 567–586 (1988).
- [304] 45, 46
TABOR, G., GOSMAN, A. D., ISSA, R. A.; *Numerical simulation of the flow in a mixing vessel stirred by a RUSHTON turbine*; S. 25–34 in [34] (1996).
- [305] 136, 136, 136
TAG, C.; *Mikrobielle Herstellung von 1,3-Propandiol*; Dissertation, Universität Oldenburg (1990).
- [306] 144
TAKAHASHI, K., MCMANAMEY, W. J., NIENOW, A. W.; *Bubble size distributions in impeller region in a gas-sparged vessel agitated by a Rushton turbine*; J. Chem. Eng. Jpn., **25**, 4, S. 427–432 (1992).

[307] 158

TAKAHASHI, K., NIENOW, A. W.; *Vortex cavity shape and the associated path-line of discharged bubbles in an aerated vessel agitated by a Rushton turbine*; J. Chem. Eng. Jpn., **25**, 5, S. 539–543 (1992).

[308] 19, 144

TAKAHASHI, K., NIENOW, A. W.; *Bubble sizes and coalescence rates in an aerated vessel agitated by a Rushton turbine*; J. Chem. Eng. Jpn., **26**, 5, S. 536–542 (1993).

[309] 234, 244, 251

TATTERSON, G. B. (ed.); *Industrial mixing fundamentals with applications*; (AIChE Symp. Ser. **91**, 305); Am. Inst. Chem. Engineers, New York (1995).

[310] 165

AL Taweel, A. M., CHENG, Y. H.; *Effect of surface tension on gas/liquid contacting in a mechanically-agitated tank with stator*; Chem. Eng. Res. Des., **73**, 8, S. 654–660 (1995).

[311] 24, 24, 25, 70, 70, 71, 71, 228, 250

TAYLOR, R., KRISHNA, R.; *Multicomponent Mass Transfer*; John Wiley & Sons, Inc., New York (1993).

[312] 244

TIKUISIS, P., WARD, C. A.; *Rate of gas absorption by liquids and “surface resistance”*; S. 114–132 in [59] (1992).

[313] 177

TOPIWALA, H. H.; *Surface aeration in a laboratory fermenter at high power inputs*; J. Ferment. Technol., **50**, 9, S. 668–675 (1972).

[314] 63, 204

TOPIWALA, H. H., HAMER, G.; *A study of gas transfer in fermenters*; Biotechnol. & Bioeng. Symp., **4**, S. 547–557 (1973).

[315] 41, 47, 51, 52, 225, 245

TRÄGÅRDH, C.; *A hydrodynamic model for the simulation of an aerated agitated fed-batch fermentor*; S. 117–134 in [154] (1988).

[316] 129

TRETTNAK, W., LEINER, M. J. P., WOLFBEIS, O. S.; (—); Analyst, **113**, S. 137 (1988); zitiert in [211].

[317] 30, 31, 34

VARDAR, F., LILLY, M. D.; *Effect of cycling dissolved oxygen concentrations on product formation in penicillin fermentations*; Eur. J. Appl. Microbiol. Biotechnol., **14**, S. 203–211 (1982).

- [318] 204
VASCONCELOS, J. M. T., NIENOW, A. W., MARTIN, T., ALVES, S. S., MCFARLANE, C. M.; *Alternative ways of applying the hydrogen peroxide steady state method of k_{La} measurement*; Chem. Eng. Res. Des., **75**, 7, S. 467–472 (1997).
- [319] 239, 246, 253
WÄCHTER, P., WECHSLER, K., DURST, F.; *Experimentelle und numerische Untersuchungen von mehrphasigen Strömungen*; 1. & 2. Fortschrittsbericht zum DFG–Schwerpunktprogramm Analyse, Modellierung und Berechnung mehrphasiger Strömungen, Lehrstuhl für Strömungsmechanik, Universität Erlangen (1999).
- [320] 207
WANG, S.; *Untersuchungen zum Stoffwechselverhalten der Hefe Saccharomyces cerevisiae DSM 2155 im Rührerkessel und zum Scale-down von Gelöstsauerstoffbedingungen im Airlift-Reaktor*; Dissertation, Universität Hannover (1992).
- [321] 129, 201
Waterloo Maple Software: Maple V, Release 3; Computeralgebrasystem.
- [322] 49
WEETMAN, R. J.; *Development of an erosion resistant mixing impeller for large scale solid suspension applications with CFD comparisons*; S. 49–56 in [292] (1994).
- [323] 204
WEILAND, P., SICK, R., ONKEN, U.; *Hydrazin–Oxidationsmethode – Ein sicheres Meßverfahren zur Bestimmung volumetrischer Stoffübergangskoeffizienten in Gas/Flüssigkeits-Systemen*; Chem. Ing. Tech., **57**, 1, S. 72–73 (1985).
- [324] 56
WERNER, F., MERSMAN, A. B.; *An engineering approach to turbulence*; S. 129–136 in [292] (1994).
- [325] 27, 165
WHITTON, M. J., NIENOW, A. W.; *Scale up correlations for gas holdup and mass transfer coefficients in stirred tank reactors*; S. 135–149 in [222] (1993).
- [326] 140
WIECHERT, W.; *Interaktive Datenanalyse bei biotechnischen Prozeßdaten*; Dissertation, Rhein. Fr.-Wilh.-Univ. Bonn (1990).
- [327] 70
WILCOX, D. C.; *Turbulence Modelling for CFD*; Griffin Printing, USA (1993); zitiert in [319].
- [328] 104
WILKINSON, P. M., VAN SCHAYK, A., SPRONKEN, J. P. M., VAN DIERENDONCK, L. L.; *The influence of gas density and liquid properties on bubble breakup*; Chem. Eng. Sci., **48**, 7, S. 1213–1226 (1993).

- [329] 55
WU, H., PATTERSON, G. K.; *Laser-doppler measurements of turbulent-flow parameters in a stirred mixer*; Chem. Eng. Sci., **44**, 10, S. 2207–2221 (1989).
- [330] 43
XU, Y., MCGRATH, G.; *CFD predictions of stirred tank flows*; Chem. Eng. Res. Des., **74**, 5, S. 471–475 (1996).
- [331] 42, 248
XUEREB, C., BERTRAND, J.; *3-D hydrodynamics in a tank stirred by a double-propeller system and filled with a liquid having evolving rheological properties*; Chem. Eng. Sci., **51**, 10, S. 1725–1734 (1996).
- [332] 35
ZENG, A. P., BIEBL, H., DECKWER, W. D.; *2,3-Butanediol production by Enterobacter aerogenes in continuous culture: role of oxygen supply*; Appl. Microbiol. Biotechnol., **33**, 3, S. 264–268 (1990).
- [333] 35
ZENG, A. P., BYUN, T. G., POSTEN, C., DECKWER, W. D.; *Use of respiratory quotient as a control parameter for optimum oxygen supply and scale-up of 2,3-butanediol production under microaerobic conditions*; Biotechnol. Bioeng., **44**, 9, S. 1107–1114 (1994).
- [334] 36, 36
ZENG, A. P., DECKWER, W. D.; *Utilization of the tricarboxylic acid cycle, a reactor design criterion for the microaerobic production of 2,3-butanediol*; Biotechnol. Bioeng., **40**, 9, S. 1078–1084 (1992).
- [335] 36
ZENG, A. P., DECKWER, W. D.; *Bioreaction techniques under microaerobic conditions: from molecular level to pilot plant reactors*; Chem. Eng. Sci., **51**, 10, S. 2305–2314 (1996).
- [336] 15
ZLOKARNIK, M.; *Eignung von Rührern zum Homogenisieren von Flüssigkeitsgemischen*; Chem. Ing. Tech., **39**, 9/10, S. 539–548 (1967); zitiert in [277].
- [337] 3, 4, 13
ZLOKARNIK, M.; *Dimensional Analysis and Scale-up in Chemical Engineering*; Springer, Berlin (1991).

Lebenslauf

Person

Name	Jochen Schütze
Geburtsdatum	16. April 1971
Geburtsort	Göttingen
Familienstand	Verheiratet

Schule

9/1977 – 7/1981	Grundschule in Lutter am Barenberge (bis 10/1980) und Grundschule Waldschule in Salzgitter-Bad
8/1981 – 7/1983	Orientierungsstufe am Eikel in Salzgitter-Bad
8/1981 – 5/1990	Gymnasium am Eikel in Salzgitter-Bad; Abschluß mit Erlangung der allgemeinen Hochschulreife (Abitur)
6/1990 – 8/1990	Praktikum an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig

Studium

10/1990 – 4/1996	Studium „Biotechnologie“ (naturwissenschaftlicher Studiengang mit Diplom) an der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig
5/1996 – 5/1999	Beschäftigung als Doktorand im Bereich Bioverfahrenstechnik (BVT) der Gesellschaft für Biotechnologische Forschung (GBF) in Braunschweig

Beruf

7/1999 – heute	Beschäftigung als Support- und Consulting-Ingenieur bei der Fluent Deutschland GmbH in Darmstadt
----------------	---

Braunschweig, den 25. November 2001

Kontaktadressen / *contact addresses*:

Jochen Schütze
Elbestraße 67
D-64390 Erzhausen
Germany

Phone: +49 / (0) 61 50 / 99 17 83
E-mail: Malin.Jochen@t-online.de

Jochen Schütze
Fluent Deutschland GmbH
Hindenburgstraße 36
D-64295 Darmstadt
Germany

Phone: +49 / (0) 61 51 / 36 44 - 0
Fax: +49 / (0) 61 51 / 36 44 - 44
E-mail: Jochen.Schuetze@fluent.de
www: www.fluent.com